
Kohärente optische Datenspeicherung mittels EIT in einem $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ -Kristall

Coherent optical data storage by EIT in a $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ crystal

Dissertation von Georg Heinze

Juli 2013



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
DARMSTADT

Fachbereich Physik
Institut für Angewandte Physik
Nichtlineare Optik und
Quantenoptik

Bitte zitieren Sie dieses Dokument als:

URN: urn:nbn:de:tuda-tuprints-36866

URL: <http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/id/eprint/3686>

Dieses Dokument wird bereitgestellt von tuprints,
E-Publishing-Service der TU Darmstadt.

<http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de>

tuprints@ulb.tu-darmstadt.de



Die Veröffentlichung steht unter folgender Creative Commons Lizenz:

Namensnennung – Keine kommerzielle Nutzung – Keine Bearbeitung 2.0

Deutschland

<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/2.0/de/>

Kohärente optische Datenspeicherung mittels EIT in einem $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ -Kristall

Vom Fachbereich Physik
der Technischen Universität Darmstadt

zur Erlangung des Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation
von Dipl.-Phys. Georg Heinze
aus Trier

Referent: Prof. Dr. Thomas Halfmann
Korreferent: Prof. Dr. Thomas Walther

Tag der Einreichung: 16.07.2013
Tag der Prüfung: 14.10.2013

Darmstadt 2013
D17

Abkürzungsverzeichnis

A/D Analog/Digital

AOM Akusto-optischer Modulator

CCD engl. *charge-coupled device*

CP Carr-Purcell (Sequenz)

D/A Digital/Analog

DD Dynamische Dekohärenzkontrolle

DDS Direkte digitale Synthese

DZS Dunkelzustandsschwebung

EA Evolutionärer Algorithmus

EIT Elektromagnetisch induzierte Transparenz

FWHM Volle Breite bei halbem Maximum (engl. *full width at half maximum*)

HF Hochfrequenz

HFS Hyperfeinstruktur

MTF Modulationstransferfunktion

Pr:YSO Praseodym-dotiertes Yttrium-ortho-Silikat ($\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$)

RHS Raman-Heterodyn-Spektroskopie

RWA Drehwellennäherung (engl. *rotating wave approximation*)

TTL Transistor-Transistor-Logik

ZEFOZ engl. *zero first order Zeeman (shift)*

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Seltenerd-dotierte Festkörper	3
1.1 Seltene Erden	3
1.2 Kristallographische Eigenschaften von $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$	4
1.3 Spektroskopische Eigenschaften	5
1.3.1 Feinstruktur und Kristallfeldzustände	5
1.3.2 Hyperfeinstruktur	7
1.4 Linienverbreiterungen	13
2 Kohärente Wechselwirkung von Licht und Materie	15
2.1 Dreiniveausystem	15
2.2 Makroskopische Systeme	18
2.3 Adiabatische Lichtspeicherung	19
2.3.1 Elektromagnetisch induzierte Transparenz	19
2.3.2 Lichtspeicherung mittels EIT	21
2.3.3 Pulspropagation	23
2.3.4 Limitierungen der Speichereffizienz	26
3 Experimenteller Aufbau	29
3.1 Erzeugung kryogener Temperaturen	30
3.2 Strahlerzeugung und Pulsformung	31
3.3 Das optische Abbildungssystem	32
3.3.1 Abbildung eines Beugungsbildes in den Kristall	32
3.3.2 Abbildung eines reellen Bildes in den Kristall	34
3.4 Detektion und Steuerung	36
3.5 Magnetfeldaufbau	36
3.5.1 Aufbau im Kryostaten	37
3.5.2 Erzeugung statischer Magnetfelder	38
3.5.3 Erzeugung hochfrequenter Magnetfelder	42
4 Lichtspeicherung I – Erste Experimente	43
4.1 Präparation des Mediums	43
4.1.1 Optisches Pumpen	43
4.1.2 Spektrales Lochbrennen in $\text{Pr}:\text{YSO}$	45
4.1.3 Implementierung des Präparationsverfahrens	46
4.2 Lichtspeicherung in $\text{Pr}:\text{YSO}$	48
4.3 Rephasierung	51

5 Lichtspeicherung II – Experimentelle Erhöhung der Speicherkapazität	55
5.1 Bildspeicherung	55
5.1.1 Bildspeicherung mittels des Fourier-Abbildungssystems	56
5.1.2 Bildspeicherung im Aufbau der reellen Abbildung	57
5.2 Frequenzmultiplexing	59
5.2.1 Präparation des Mediums	59
5.2.2 Experimenteller Nachweis des Frequenzmultiplexings	60
5.3 Winkelmultiplexing	63
5.3.1 Präparation des Mediums	64
5.3.2 Experimenteller Nachweis des Winkelmultiplexings	64
5.4 Kombiniertes Frequenz- und Winkelmultiplexing	66
6 Reduktion der Dekohärenz mittels externer Magnetfelder	68
6.1 Raman-Heterodyn-Spektroskopie	69
6.1.1 Theorie der kohärenten Raman-Streuung	69
6.1.2 Heterodyn-Nachweis	71
6.1.3 Spektroskopie der Zeeman-Aufspaltung	72
6.2 Reduktion der Dekohärenz mittels externer Magnetfelder	74
6.2.1 Spinechos	75
6.2.2 Dekohärenz in Pr:YSO	76
6.2.3 Messung der Kohärenzzeit ohne externe Magnetfelder	78
6.2.4 Einfluss externer Magnetfelder auf die Kohärenzzeit	79
6.2.5 Verlängerung der Kohärenzzeit durch externe Magnetfelder .	82
6.3 Dynamische Dekohärenzkontrolle	87
7 Lichtspeicherung III – Experimentelle Erhöhung der Speicherdauer	89
7.1 Evolutionäre Strategien	90
7.2 Präparation des Mediums	92
7.3 Lichtspeicherung im externen Magnetfeld	96
7.3.1 Dynamische Dekohärenzkontrolle und Bildspeicherung	97
Zusammenfassung und Ausblick	99
Abstract	101
A Spektroskopische Parameter zur Berechnung der Hyperfeinstruktur	103
B Simulation des optischen Pumpens	105
C Rephasierung im Vierniveausystem	108
D Skalierung des Spinechosignals während der ZEFOZ-Gradientensuche	115
Literaturverzeichnis	116
Veröffentlichungen, Tagungsbeiträge und Medienecho	132
Betreute Master- und Bachelorarbeiten	136
Lebenslauf	137
Danksagung	138

Einleitung

Licht wird in modernen Kommunikationsnetzwerken als schneller und effizienter Träger von Information eingesetzt. Die Verarbeitung der Daten erfolgt dabei aber meist noch auf elektronischem Wege. Hierbei spielen Prozessoren und Speicher auf Basis von Halbleitern sowie rein magnetische Speichermedien eine zentrale Rolle. Diese „klassischen“ Technologien stoßen aufgrund der beschränkten Miniarisierung der elektronischen Komponenten an ihre physikalischen Grenzen. So liegt die Strukturgröße heutiger integrierter Schaltungen bereits im Bereich von nur 10 nm. Dies entspricht einer Breite der elektronischen Leitungen von lediglich ca. 100 Atomen. Bei fortschreitender Verkleinerung der Strukturen zur Steigerung von Rechenleistung und Speicherkapazität werden daher in absehbarer Zeit quantenmechanische Effekte innerhalb der Bauteile die dominierende Rolle spielen.

Eine Lösung dieses Problems bietet die Quanteninformationsverarbeitung [1–3]. Beim meist diskutierten Ansatz wechselwirken die Photonen als Träger der Information direkt mit einzelnen Atomen, in denen die Informationsverarbeitung auf Basis quantenmechanischer Phänomene erfolgt. Der fundamentale Vorteil dieses Konzepts liegt in der Fähigkeit eines Quantensystems gleichzeitig mehrere Zustände einnehmen zu können. Im Gegensatz zur klassischen Booleschen Logik können daher parallele Berechnungen durchgeführt werden.

Voraussetzung für die Implementierung von optischen Quantenrechnern ist die Speicherung optisch kodierter Information in Quantensystemen. Eine Zwischenspeicherung der optischen Signale in elektronischen Informationseinheiten ist dabei nicht sinnvoll. Hierbei gehen im Allgemeinen Informationsfreiheitsgrade verloren, welche für die Quanteninformationsverarbeitung essentiell sind. So müssen insbesondere die zeitlichen Verläufe von Amplitude, Phase und Polarisation sowie die Propagationsrichtung der Photonen gespeichert werden. Das aktuelle Forschungsgebiet der optischen Quantenspeicher [4–8] beschäftigt sich mit der Suche nach geeigneten Speichermedien und Verfahren. Ein prominenter Ansatz basiert dabei auf der elektromagnetisch induzierten Transparenz (EIT) [9–11]. EIT ist ein Quanteninterferenzeffekt, der die gezielte, effiziente Manipulation der linearen und nichtlinearen optischen Eigenschaften eines Quantensystems erlaubt. So kann neben der Unterdrückung von Absorption auch die Dispersion manipuliert werden. Dies erlaubt u.a. die Verlangsamung [12–14] oder sogar das Anhalten bzw. Stoppen von Lichtpulsen [15, 16]. Letzteres ermöglicht die vollständige, kohärente und reversible Speicherung von Lichtpulsen in einem Quantensystem.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, mittels EIT, einen Speicher für kohärente, optische Pulse zu realisieren. Dabei sollen sowohl hohe Speicherkapazitäten als auch lange Speicherdauern erreicht werden. Diese Merkmale sind für die realistische, technische Anwendbarkeit eines solchen Speichers von hoher Relevanz. So werden hohe Speicherkapazitäten für die effiziente Verarbeitung großer Datenmengen benötigt [4, 17, 18]. Ferner können dadurch kürzere Kommunikationszeiten sowie eine höhere Fehlertoleranz erzielt werden [19, 20]. Die Speicherdauer

spielt aktuell im Bereich der Quantenkommunikation eine zentrale Rolle. Hier sind Quantenspeicher grundlegender Bestandteil von Quantenrepeatern, die eingesetzt werden, um die räumliche Kommunikationsreichweite auszudehnen [21]. Solche Netzwerke benötigen Speicherzeiten im Bereich von Millisekunden für spezielle Protokolle [20, 22] oder mehrere Sekunden für Standardprotokolle [23].

Bislang wurde die überwiegende Zahl der Experimente zur EIT-getriebenen Lichtspeicherung an atomaren Gasen durchgeführt. Diese weisen geringe spektrale Bandbreiten als wesentlichen Vorteil auf. Demgegenüber sind Gase jedoch schlecht skalierbar, technisch schwer handhabbar und ermöglichen oft nur geringe Speicherdichten. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Lichtspeicherung daher an einem seltenerd-dotierten Festkörper implementiert. Solche Medien besitzen für Festkörper ungewöhnlich schmale Linienbreiten und eignen sich daher ebenfalls für quantenoptische Manipulationsverfahren wie EIT [24].

Zur Erhöhung der Speicherkapazität werden im Rahmen dieser Arbeit drei Techniken untersucht: Dem Lichtpuls kann bei der EIT-getriebenen Lichtspeicherung transversale Information (d.h. Bilder) aufgeprägt werden. Dadurch wird die Kapazität beträchtlich erhöht. Im Bereich der Quantenspeicher wurde dieser Ansatz erst in jüngster Zeit, in sehr wenigen Arbeiten, fast ausschließlich in Gasen implementiert [25–29]. Des Weiteren werden Multiplexing-Techniken aus der klassischen Holographie [30] (räumlich selektives Winkelmultiplexing sowie spektral selektives Frequenzmultiplexing) implementiert und mit EIT kombiniert.

Zur Erhöhung der Speicherzeit müssen störende Einflüsse wie Dephasierung und Dekohärenz, welche die im Medium gespeicherte Information abbauen, kontrolliert und unterdrückt werden. In dieser Arbeit werden hochfrequente Magnetfeldpulse eingesetzt, um die Quantensysteme effektiv von der Umgebung zu entkoppeln. Ferner werden statische Magnetfelder in drei Raumdimensionen genutzt, um die Quantensysteme sehr insensitive gegenüber Dekohärenz werden zu lassen. Hierdurch entstehen jedoch äußerst komplexe Energieniveau-Strukturen, welche in dieser Arbeit präzise charakterisiert werden. Um die Quantensysteme in der Mannigfaltigkeit der Niveaus optimal für EIT zu präparieren, werden Strategien der rückkopplungsgesteuerten Pulsformung mit Hilfe evolutionärer Optimierungsverfahren eingesetzt. Die Kombination von EIT mit Techniken zur Dekohärenzkontrolle, rückkopplungsgesteuerter Pulsformung sowie Bildspeicherung und Multiplexing ermöglicht die Implementierung eines EIT-getriebenen Festkörperspeichers mit bisher nicht erreichten Speicherzeiten und Kapazitäten.

Die vorliegende Arbeit ist wie folgt gegliedert: In Kapitel 1 und 2 wird das hier genutzte Medium sowie das grundlegende Prinzip der Lichtspeicherung auf Basis von EIT vorgestellt. Anschließend wird in Kapitel 3 der experimentelle Aufbau beschrieben. In Kapitel 4 wird die grundlegende Präparation des Mediums eingeführt und Experimente zur Lichtspeicherung für den Fall schwacher externer Magnetfelder präsentiert. In den in Kapitel 5 diskutierten Experimenten werden Techniken zur Erhöhung der Speicherkapazität implementiert. Kapitel 6 befasst sich mit der Unterdrückung von Dekohärenz mittels starker externer statischer Magnetfelder sowie hochfrequenter Magnetfeldpulse. Schließlich werden in den in Kapitel 7 vorgestellten Experimenten die zuvor erprobten Techniken auf die EIT-getriebene Lichtspeicherung angewandt und mit der Bildspeicherung kombiniert.

Kapitel 1

Seltenerd-dotierte Festkörper

Experimente im Bereich der Quantenoptik erfordern im Allgemeinen Medien mit präzise definierter spektroskopischer Struktur. Die überwiegende Zahl der Experimente wurde daher in Vergangenheit an atomaren oder molekularen Gasen durchgeführt, welche sich durch spektral scharfe Übergänge auszeichnen. Neben den warmen atomaren Medien wird aktuell auch verstärkt an isolierten, ultrakalten Gasen bis hin zu Bose-Einstein-Kondensaten geforscht, da diese noch geringe Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Quantensystemen aufweisen können [31–33].

Eine attraktive Alternative zu den etablierten gasförmigen Medien bieten „atom-ähnliche“ Festkörper. Hierzu zählen Defektzentren in Diamant [34–37], Quantenpunkte [38, 39] oder seltenerd-dotierte Festkörper [40–43]. Diese Medien zeichnen sich durch geringe Dekohärenzraten, sehr schmale homogene Linienbreiten und eine gute Handhabung aus. Im Gegensatz zu Gasen erlauben die Festkörper hohe Dichten und einfache Skalierbarkeit. Der in dieser Arbeit genutzte Praseodym-dotierte Yttrium-ortho-Silikat-Kristall ($\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ kurz Pr:YSO) zählt zur Klasse der seltenerd-dotierten Festkörper und wird im Folgenden vorgestellt.

1.1 Seltene Erden

Der Begriff „Seltene Erden“ bezeichnet in seiner umfassendsten Definition die Elemente Scandium (Ordnungszahl $Z=21$), Yttrium ($Z=39$) und die 15 Lanthanoide von Lanthan bis Lutetium ($Z=57\ldots 71$) [44]. Von besonderem spektroskopischem Interesse sind hierbei die Lanthanoide, welche sich durch eine einzigartige inneratomare Konfiguration auszeichnen. Bei diesen Elementen sind die 5s-, 5p- und 6s-Elektronenschalen voll besetzt, während die 4f-Schale mit steigender Ordnungszahl aufgefüllt wird. Hierbei sinkt der Radius des Atoms (Lanthanoidenkontraktion). Aufgrund der größeren radialen Ausdehnung der vollbesetzten Schalen schirmen diese die innen liegende 4f-Schale gegenüber äußeren Einflüssen ab.

Werden Lanthanoide in anorganische Kristalle eingebracht, liegen diese als dreiwertige Ionen vor, deren 6s-Schale nun nicht mehr notwendigerweise besetzt ist. Abgesehen von La^{3+} (leere 4f-Schale) und Lu^{3+} (volle 4f-Schale) können optische Übergänge innerhalb der 4f-Schale auftreten, welche im freien Atom dipolverboten sind. Aufgrund der elektronischen Abschirmung sind die beobachteten homogenen Linienbreiten für Festkörper ungewöhnlich schmal [45–47]. Hieraus resultiert auch die hohe Relevanz der seltenerd-dotierten Festkörper für technische

Anwendungen, wie z.B. als aktives Lasermedium. Als prominentes Beispiel ist hier der Neodym-dotierte Yttrium-Aluminium-Granat (Nd:YAG) Laser zu nennen.

Das in dieser Arbeit genutzte Lanthanoid ist Praseodym ($Z=59$), welches lediglich ein stabiles Isotop (^{141}Pr) aufweist. Die Elektronenkonfiguration des dreiwertigen Pr^{3+} -Ions ist $[\text{Xe}]4f^2$. Abbildung 1.1 zeigt die radiale Aufenthaltswahrscheinlichkeit der 4f-, 5s- und 5p-Elektronen eines solchen Pr^{3+} -Ions.

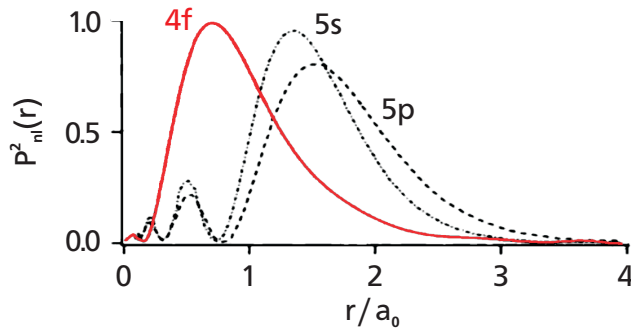


Abbildung 1.1: Quadrierter Radialteil der Wellenfunktion der 4f-, 5s- und 5p-Orbitale eines freien Pr^{3+} -Ions. Die innen liegende, nur zweifach besetzte 4f-Schale wird von den äußeren, vollen 5s- und 5p-Schalen elektronisch abgeschirmt. Die Abbildung wurde aus [48] entnommen.

1.2 Kristallographische Eigenschaften von $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$

Der Wirtskristall Y_2SiO_5 besitzt eine monokline Struktur mit C_{2h}^6 (C_2/c) Symmetrie [49,50] und zeichnet sich durch eine hohe mechanische Festigkeit und thermische Stabilität aus [51]. Pro konventioneller Einheitszelle besitzt der Kristall vier Y_2SiO_5 Moleküle, welche jeweils zwei dreiwertige Yttrium-Ionen aufweisen [52]. Die Umgebung der zwei Y^{3+} -Ionen ist hierbei kristallographisch nicht äquivalent. Die Position der Y^{3+} -Ionen lässt sich daher in zwei kristallographische Einbaulagen (engl. *sites*) unterteilen. Jede dieser Lagen besitzt lediglich C_1 -Symmetrie, ist also nicht rotationssymmetrisch. Hieraus resultieren unterschiedliche spektrale Eigenschaften der Dotierungionen Pr^{3+} , welche die Y^{3+} -Ionen an Lage 1 oder Lage 2 ersetzen können. Die Ionen einer kristallographischen Lage können wiederum in zwei magnetische Lagen (A und B) unterteilt werden. Aufgrund unterschiedlicher kernmagnetischer Ausrichtungen reagieren Ionen der Lage A und der Lage B unterschiedlich auf externe Magnetfelder (s. Kap. 1.3.2.2). Die Position der Ionen innerhalb einer Lage sind über die C_2 -Achse des Kristalls miteinander verknüpft [53].

Die Kombination von Y_2SiO_5 als Wirtskristall und Pr^{3+} als Dotierung ion bietet mehrere Vorteile. Yttrium und Praseodym besitzen beide eine stabile dreiwertige Oxidationsstufe, so dass es bei der Dotierung zu keinerlei Ladungsträgerverschiebung innerhalb des Kristalls kommt. Des Weiteren sind die Ionenradien von Pr^{3+} und Y^{3+} nahezu identisch. Die Pr^{3+} -Ionen fügen sich somit gut in das vorhandene Kristallgitter ein. Darüber hinaus weisen die Gitterionen besonders geringe kernmagnetische Momente auf [46]. Hieraus resultiert eine relativ schwache Wechselwirkung zwischen den Pr^{3+} -Ionen und deren Umgebung. Dies führt zusammen mit der elektronischen Abschirmung der 4f-Schale zu den für einen Festkörper ungewöhnlich langen Populationslebensdauern von bis zu $\sim 100\text{ s}$ (s. Kap. 1.4) sowie zu sehr schmalbandigen spektroskopischen Charakteristika. Typische Dotierungskonzentrationen liegen im Bereich von $0,01 - 0,1\text{ at.}\%$.

1.3 Spektroskopische Eigenschaften

Die für diese Arbeit relevanten optischen Übergänge finden innerhalb der 4f-Schale der Pr^{3+} -Ionen statt. Der elektronische Grundzustand ist nach Russel-Saunders-Notation¹ 3H_4 . Dieser kann für Lage 1 durch optische Strahlung der Wellenlänge $\lambda = 605,98 \text{ nm}$ an den ersten optisch anregbaren Zustand 1D_2 gekoppelt werden [54]. Hierbei ist zu beachten, dass das optische Spektrum im Allgemeinen durch eine Vielzahl von Beiträgen modifiziert wird, welche mittels eines vereinfachten Hamiltonoperators des Systems beschrieben werden können [55]:

$$\hat{H}_{\text{Ion}} = \underbrace{[\hat{H}_0 + \hat{H}_C + \hat{H}_{SB}]}_{\text{freies Ion}} + \underbrace{\hat{H}_{KF}}_{\text{Kristallfeld}} + \underbrace{[\hat{H}_{HF} + \hat{H}_Q + \hat{H}_Z + \hat{H}_z]}_{\text{Hyperfeinstruktur}} \quad (1.1)$$

Die Termstruktur eines freien Ions wird durch potentielle und kinetische Energie (\hat{H}_0), Coulomb-Wechselwirkung (\hat{H}_C) und Spin-Bahn-Wechselwirkung (\hat{H}_{SB}) bestimmt. Wird das Pr^{3+} -Ion in den Kristall eingebracht, wirkt sich die Umgebung (Kristallfeld \hat{H}_{KF}) auf die energetische Struktur aus. Schließlich werden die Niveaus durch die Hyperfeinwechselwirkungen weiter aufgespalten. Hierzu zählen magnetische Hyperfein- (\hat{H}_{HF}), elektrische Kernquadrupol- (\hat{H}_Q), elektrische Zeeman- (\hat{H}_Z) und nukleare Zeeman-Wechselwirkung (\hat{H}_z). Im Folgenden sollen die verschiedenen Beiträge zur Aufspaltung und Verschiebung der Energieniveaus kurz vorgestellt werden. Für eine umfassende Einführung in die Thematik sei auf [40, 41, 56] verwiesen.

1.3.1 Feinstruktur und Kristallfeldzustände

In diesem Abschnitt werden die ersten vier Beträge des Hamiltonoperators (1.1) näher betrachtet. Diese Beiträge dominieren die spektroskopische Struktur und bestimmen somit die Wellenlänge des optischen Übergangs $^3H_4 \leftrightarrow ^1D_2$ von 605,98 nm. Die Wechselwirkungen, welche im freien Ion auftreten, werden durch

$$\begin{aligned} \hat{H}_0 &= -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_{i=1}^N \Delta_i - \sum_{i=1}^N \frac{\bar{Z}e^2}{r_i} \\ \hat{H}_C &= \sum_{i < j}^N \frac{e^2}{r_{ij}} \\ \hat{H}_{SB} &= \sum_{i=1}^N \zeta(r_i) \vec{l}_i \cdot \vec{s}_i \end{aligned} \quad (1.2)$$

beschrieben. Hierbei gibt N die Zahl der Elektronen in der nicht abgeschlossenen 4f-Schale an. $\bar{Z}e$ ist die effektive Kernladung, welche durch die abgeschlossenen Schalen auf die 4f-Elektronen wirkt. Die Coulomb-Wechselwirkung und die Spin-Bahn-Wechselwirkung sind sphärisch nicht symmetrisch und tragen daher zu einer Aufspaltung der Energieniveaus (Feinstruktur) bei. Die einzelnen Feinstrukturkomponenten besitzen einen definierten Gesamtdrehimpuls J und sind bezüglich ihrer Projektionsquantenzahl m_J maximal $(2J + 1)$ -fach entartet. Der energetische Abstand solcher J -Multipletts liegt in der Größenordnung von 1000 cm^{-1} [41].

¹Termbezeichnung in Russel-Saunders-Kopplung: $^{2S+1}L_J$

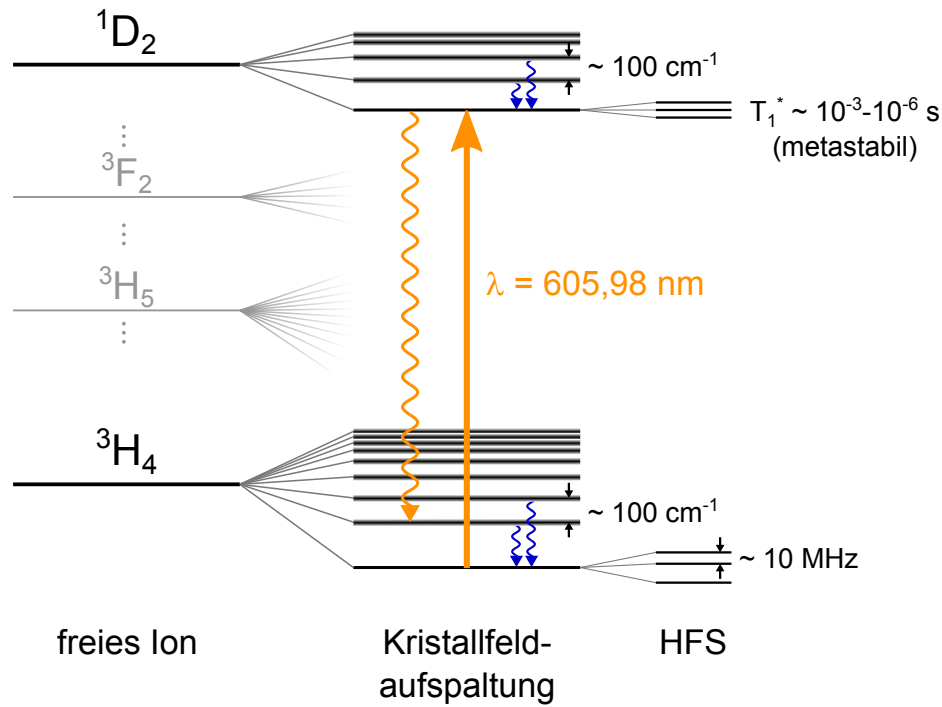


Abbildung 1.2: Termschema von Pr^{3+} -Ionen. Bei dotierten Ionen bewirkt das Kristallfeld eine Energieaufspaltung in der Größenordnung typischer Phononenenergien. Die Kristallfeldzustände zeigen Hyperfeinaufspaltung. Spektroskopische Daten nach [56].

Der vierte Beitrag in Gleichung (1.1) entsteht durch die Wechselwirkung eines dotierten Pr^{3+} -Ions mit den umgebenden elektrischen Ladungen der Gitterionen. Aufgrund der geringen Symmetrie dieses Kristallfeldes werden die J -Mannigfaltigkeiten in maximal $(2J + 1)$ Energieniveaus aufgespalten (s. Abb. 1.2). Der energetische Abstand solcher Kristallfeldzustände liegt im Bereich von 100 cm^{-1} [56]. Um phononische Anregungen in höhere Kristallfeldzustände zu vermeiden, kann der Kristall auf kryogene Temperaturen gekühlt werden. Dies begünstigt die langen Lebensdauern der niedrigsten Kristallfeldzustände, welche auch als „zero phonon lines“ bezeichnet werden [42].

Das Kristallfeld ist zudem für Beimischungen alternativer Elektronenkonfigurationen, wie z.B. $[\text{Xe}]4f^{N-1}5d$, zur idealen $[\text{Xe}]4f^2$ -Konfiguration eines freien Pr^{3+} -Ions verantwortlich. Durch die Mischung von Zuständen unterschiedlicher Parität wird das Dipolverbot des Übergangs $^3H_4 \leftrightarrow ^1D_2$ abgeschwächt. Erst hierdurch ist der für diese Arbeit relevante Übergang zwischen den niedrigsten Kristallfeldzuständen $^3H_4(0)$ und $^1D_2(0)$ optisch erlaubt. Allerdings sind die Beimischungen moderat, so dass die optischen Übergänge vergleichsweise geringe Oszillatorstärken aufweisen [57]. Darüber hinaus ist die Kopplungsstärke aufgrund der Anisotropie des Kristalls auch von der Polarisierung des Lichtfeldes abhängig. Maximale Kopplung, d.h. eine hohe Absorption wird erreicht, wenn die Polarisationsrichtung senkrecht zur C_2 -Achse des Kristalls gewählt wird.

1.3.2 Hyperfeinstruktur

Das einzig stabile Isotop von Praseodym ($^{141}_{59}\text{Pr}$) besitzt einen Kernspin von $I = 5/2$. Dies führt zur Hyperfeinaufspaltung der einzelnen Kristallfeldzustände. Die Hyperfeinstruktur (HFS) ist für die vorliegende Arbeit von besonderem Interesse, da innerhalb dieser geeignete Niveausysteme zur Lichtspeicherung gefunden werden können. Im Folgenden wird der letzte Teil des Hamiltonoperators (1.1) näher betrachtet, welcher sich in einen Magnetfeld-unabhängigen Teil und einen abhängigen Teil separieren lässt:

$$\hat{H}_{HFS} = \underbrace{\hat{H}_{HF} + \hat{H}_Q}_{\text{unabhängig von } \vec{B}} + \underbrace{\hat{H}_Z + \hat{H}_z}_{\text{abhängig von } \vec{B}} \quad (1.3)$$

Da die dotierten Pr^{3+} -Ionen zwei Elektronen in der 4f-Schale aufweisen, bilden sich die Kristallfeldzustände als Singulets aus². Aufgrund der gepaarten Elektronenspins und der niedrigen Symmetrie des Kristallfeldes sind die einzelnen Komponenten des Erwartungswerts des Gesamtdrehimpulses in erster Ordnung Störungsrechnung identisch Null ($\langle \psi | J_i | \psi \rangle = 0$ mit $i = x, y, z$) [58, 59]. Erst in zweiter Ordnung wirkt sich der Gesamtdrehimpuls auf die HFS aus, so dass alle Terme in (1.3) in derselben Größenordnung zur Hyperfeinwechselwirkung beitragen.

1.3.2.1 Hyperfeinstruktur ohne externes Magnetfeld

Für den Fall, dass kein externes Magnetfeld vorhanden ist, sind die Zeeman-Beiträge ($\hat{H}_Z + \hat{H}_z$) Null (s. Kap. 1.3.2.2). Dann spielen lediglich die Hyperfeinwechselwirkung \hat{H}_{HF} und die Kernquadrupolwechselwirkung \hat{H}_Q eine Rolle. Die magnetische Komponente der Hyperfeinwechselwirkung ist durch

$$\hat{H}_{HF}^{(mag)} = A_J^2 \vec{I} \cdot \hat{\Lambda} \cdot \vec{I} \quad (1.4)$$

gegeben [60], wobei A_J die Hyperfein-Kopplungskonstante des spezifischen J -Multipletts und $\vec{I} = (I_x, I_y, I_z)$ der Vektor der nuklearen Spinoperatoren ist. Der Tensor $\hat{\Lambda}$ hängt vom Gesamtdrehimpuls J ab und ist daher erst in zweiter Ordnung relevant:

$$\Lambda_{\alpha\beta} = \sum_{n=1}^{2J+1} \frac{\langle 0 | J_\alpha | n \rangle \langle n | J_\beta | 0 \rangle}{E_n - E_0} \quad (1.5)$$

Hierbei sind α und β die Achsen $\{x, y, z\}$ und E_0 die Energie des Zustandes $|0\rangle$, welcher durch (1.3) beschrieben wird (also z.B. $^3H_4(0)$ oder $^1D_2(0)$). E_n bezeichnet die Energien der übrigen Kristallfeldzustände $|n\rangle$ des entsprechenden J -Multipletts.

Infolge des Kernspins von $I = 5/2$ besitzt der Pr^{3+} -Kern ein elektrisches Quadrupolmoment, welches mit dem inhomogenen elektrischen Feld der umgebenden Ladungsträger wechselwirkt. Der resultierende Beitrag zur HFS ist durch

$$\hat{H}_Q = P \left[(I_z^2 - I(I+1)/3) + (\eta/3)(I_x^2 - I_y^2) \right] \quad (1.6)$$

²Bei einer ungeraden Anzahl von Elektronen spricht man von Kramers-Ionen. In diesem Fall bilden sich Multipletts aus, die zu einer verstärkten Hyperfeinwechselwirkung mit Aufspaltungen im Bereich von $\Delta\nu_{HFS} \simeq 1 \text{ GHz}$ führen können.

gegeben. P ist die Quadrupol-Kopplungskonstante, η ist der Asymmetrieparameter des Gradienten des elektrischen Feldes am Ort des Kerns und $\{x', y', z'\}$ die Hauptachsen dessen Tensors.

Um diese magnetfeldunabhängigen Terme (1.4) und (1.6) zusammenzufassen, kann $\hat{H}_{HF}^{(mag)}$ auch in der sogenannten Pseudoquadrupoldarstellung geschrieben werden:

$$\hat{H}_{PQ} = D_{PQ} \left[I_z^2 - I(I+1)/3 \right] + E_{PQ} \left[I_x^2 - I_y^2 \right] \quad (1.7)$$

Die Pseudoquadrupolparameter D_{PQ} , E_{PQ} ergeben sich aus (1.5):

$$D_{PQ} = A_J^2 \cdot \left[\frac{1}{2}(\Lambda_{xx} + \Lambda_{yy}) - \Lambda_{zz} \right] \quad (1.8a)$$

$$E_{PQ} = A_J^2 \cdot \frac{1}{2}(\Lambda_{xx} - \Lambda_{yy}) \quad (1.8b)$$

Da (1.6) und (1.7) dieselbe Form besitzen, ist deren Wirkung experimentell nicht unterscheidbar. Sie werden daher meist in einem effektiven Quadrupol-Hamiltonoperator zusammengefasst:

$$\hat{H}_{EQ} = \hat{H}_Q + \hat{H}_{PQ} = D \left[(I_{z''}^2 - I(I+1)/3) + E(I_{x''}^2 - I_{y''}^2) \right] \quad (1.9)$$

Bei dieser Darstellung tritt ein neues Hauptachsensystem $\{x'', y'', z''\}$ auf. Es entsteht, da in Lagen mit niedriger Symmetrie die Achsen von $\hat{\Lambda}$ (d.h. $\{x, y, z\}$) und \hat{H}_Q (d.h. $\{x', y', z'\}$) im Allgemeinen nicht übereinstimmen. Die effektiven Quadrupolparameter sind durch

$$D = P + D_{PQ} \quad \text{und} \quad E = \frac{1}{3}P\eta + E_{PQ} \quad (1.10)$$

gegeben. Diese sind experimentell zugänglich und bestimmen die Hyperfeinaufspaltung im magnetfeldfreien Fall. Für die beiden Zustände $^3H_4(0)$ und $^1D_2(0)$ wurden D und E mittels verschiedener Techniken zunehmend präziser vermessen (s. Tab. 1.1).

Tabelle 1.1: Effektive Quadrupolparameter nach [50,54,58,61]. Unterschiedliche Vorzeichen sind auf die Wahl zweier Hauptachsensysteme zurückzuführen. Alle Angaben in MHz.

Zustand	Parameter	[54]	[61]	[58]	[50]
$^3H_4(0)$	D	4,44	-4,443	4,4450	-4,4435
	E	0,56	-0,503	0,5624	-0,56253
$^1D_2(0)$	D	1,36	1,39	1,3575	1,35679
	E	0,425	0,46	0,4228	0,42192

Die bisherige Betrachtung galt für Pr^{3+} -Ionen der Einbaulage A. Um den effektiven Quadrupol-Hamiltonoperator für Ionen der Lage B zu erhalten, nutzt man die C_2 -Symmetrie des Kristalls. Hierzu stellt man (1.9) mit Hilfe des effektiven Quadrupoltensors \hat{Q} in der Form von (1.4) dar [55,60] und führt Rotationsmatrizen R ein [50,58]:

$$\hat{H}_{EQ} = \vec{I} \cdot \hat{Q} \cdot \vec{I} \quad \text{mit} \quad \hat{Q} = R_{C_2} \cdot R_Q \cdot \begin{pmatrix} E - \frac{1}{3}D & 0 & 0 \\ 0 & -E - \frac{1}{3}D & 0 \\ 0 & 0 & \frac{2}{3}D \end{pmatrix} \cdot R_Q^T \cdot R_{C_2}^T \quad (1.11)$$

Die innere Rotation entspricht hierbei einer Transformation vom Hauptachsensystem des \hat{Q} -Tensors ins Laborsystem. Diese wird gemäß der zyz -Konvention [62] mit den Eulerwinkeln α_Q , β_Q , γ_Q durchgeführt:

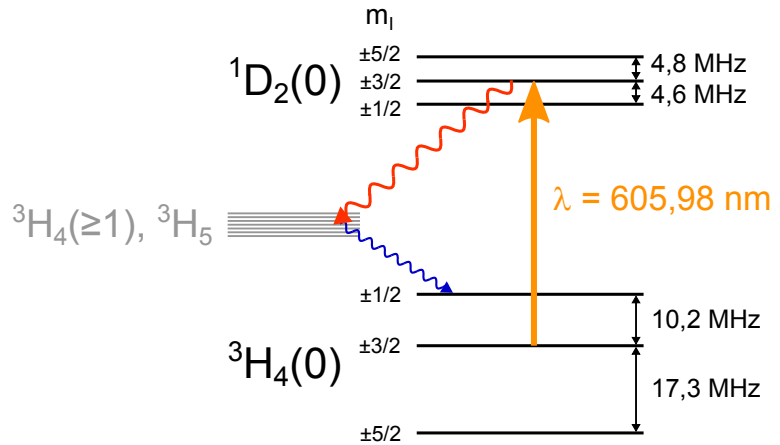
$$R_Q(\alpha_Q, \beta_Q, \gamma_Q) = R_z(\gamma_Q) \cdot R_y(\beta_Q) \cdot R_z(\alpha_Q) \quad (1.12)$$

Die äußere Rotation entspricht einer Drehung um 180° um die C_2 -Achse des Kristalls, welche wiederum durch die Eulerwinkel α_{C_2} und β_{C_2} definiert ist:

$$R_{C_2} = R(\alpha_{C_2}, \beta_{C_2}, 0)^T \cdot R(180^\circ, 0, 0) \cdot R(\alpha_{C_2}, \beta_{C_2}, 0) \quad (1.13)$$

Eine Auflistung aller Parameter der Zustände 3H_4 und 1D_2 ist in Anhang A zu finden [50, 58]. Diagonalisiert man den effektiven Quadrupol-Hamiltonoperator (1.11), so erhält man als Eigenwerte die relativen Energien der Hyperfeinzustände. Aus deren Differenz ergeben sich die Übergangsfrequenzen der Hyperfeinniveaus, welche im Bereich von etwa 10 MHz liegen. Da die Kernspinoperatoren quadratisch in (1.9) eingehen, sind die Hyperfeinzustände zweifach entartet. Diese werden typischerweise entsprechend ihrer Projektionsquantenzahl mit m_I bezeichnet. Wegen $I = 5/2$ spaltet jeder Kristallfeldzustand in drei Hyperfeinniveaus mit $m_I = \pm\frac{1}{2}, \pm\frac{3}{2}, \pm\frac{5}{2}$ auf. Abbildung 1.3 stellt die Hyperfeinaufspaltung des Übergangs $^3H_4(0) \leftrightarrow ^1D_2(0)$ ohne Einfluss eines äußeren Magnetfeldes dar.

Abbildung 1.3: Hyperfeinaufspaltung der niedrigsten Kristallfeldzustände des Grund- und des ersten optisch anregbaren Zustandes. Die spektroskopischen Abstände sind mittels (1.11) berechnet.



Neben den Energieabständen können aus (1.11) auch die optischen Dipolübergangsmomente μ_{ij} zwischen den einzelnen Hyperfeinzuständen $|i\rangle$ und $|j\rangle$ berechnet werden. Dabei bewirkt die geringe Symmetrie des Kristallfeldes ($E \neq 0$), dass die Zustände nicht als reine Spinzustände, sondern als Kombination mehrerer Kernspinwellenfunktionen vorliegen. Aufgrund der nicht mehr vorhandenen Eigenzustände verlieren die Quantenzahlen ihre Gültigkeit, so dass die Auswahlregel $\Delta m_I = 0$ nicht mehr streng gilt. Im magnetfeldfreien Fall sind daher neun verschiedene Übergänge zwischen elektronischem Grundzustand und angeregtem

Zustand möglich. Unter der Annahme, dass sich die Wellenfunktionen in einen elektronischen Teil $|\varphi\rangle$ und einen Spinanteil $|m\rangle$ separieren lassen, gilt [63]:

$$\mu_{ij} = \langle i|\mu|j\rangle = \langle \varphi_i|\mu|\varphi_j\rangle \langle m_i|m_j\rangle \quad (1.14)$$

Der optische Anteil $\langle \varphi_i|\mu|\varphi_j\rangle$ ist aufgrund der gleichen elektronischen Zustände für alle neun Übergänge identisch. Die relativen Oszillatorstärken $f_{ij} = |\langle m_i|m_j\rangle|^2$ können daher aus dem Überlapp der Kernspinwellenfunktionen berechnet werden, welche wiederum den Eigenvektoren des effektiven Quadrupol-Hamiltonoperators (1.11) entsprechen. Tabelle 1.2 zeigt eine Übersicht der berechneten, sowie der experimentell gemessenen Oszillatorstärken der neun möglichen Hyperfeinübergänge im magnetfeldfreien Fall.

Tabelle 1.2: Relative Oszillatorstärken f des Übergangs ${}^3H_4(0) \leftrightarrow {}^1D_2(0)$ für $B = 0$ nach [50]. Die experimentellen Werte sind [64] entnommen. Übergänge vergleichsweise hoher relativer Oszillatorstärken sind grün hinterlegt.

${}^3H_4 \backslash {}^1D_2$		$ \pm \frac{1}{2}\rangle$	$ \pm \frac{3}{2}\rangle$	$ \pm \frac{5}{2}\rangle$
$ \pm \frac{1}{2}\rangle$	calc.	0,560	0,373	0,067
	exp.	0,55	0,38	0,07
$ \pm \frac{3}{2}\rangle$	calc.	0,399	0,594	0,007
	exp.	0,40	0,60	0,01
$ \pm \frac{5}{2}\rangle$	calc.	0,041	0,033	0,936
	exp.	0,05	0,02	0,93

Die Übergangsmomente sind teilweise stark unterschiedlich. Insbesondere fällt auf, dass sich das Sechsniveausystem in ein effektives Vier- und ein effektives Zweiniveausystem unterteilen lässt (siehe hell- bzw. dunkelgrün hinterlegte Flächen in Tabelle 1.2). Dies kann dazu genutzt werden, um optimierte Niveausysteme innerhalb der Termstruktur zu präparieren (s. Kap. 4.1). Die in Tabelle 1.2 angegebenen relativen Oszillatorstärken bilden die Grundlage der in dieser Arbeit durchgeführten Simulation zur Wechselwirkung von Laserstrahlung mit den dotierten Pr^{3+} -Ionen im magnetfeldfreien Fall.

Die Absolutwerte der Übergangsdipolmomente μ_{ij} liegen in der Größenordnung von 10^{-32} Cm [54]. Die sich hieraus ergebenden relativ langen Zerfallsdauern von ca. 20 ms werden in der Realität allerdings nicht beobachtet. Stattdessen beträgt die gemessene Lebensdauer der angeregten Niveaus $T_1^* = 164 \pm 5 \mu\text{s}$ [54]. Hierfür sind weitere Zerfallskanäle in höhere Kristallfeldzustände (${}^3H_4(n \geq 1)$) oder andere J-Multipletts (3H_5 , 3F_2 , etc.) verantwortlich. Von diesen findet anschließend ein strahlungsloser Zerfall in den Grundzustand statt. Die Relaxationszeit T_1 der einzelnen Hyperfeinzustände innerhalb des Grundzustandes liegt in der Größenordnung von 100 s [64]. Sie ist beschränkt durch Spinflip-Prozesse und phononische Wechselwirkungen, so dass T_1 stark temperaturabhängig ist [61]. Die hier angegebenen Werte gelten für kryogene Temperaturen im Bereich von $T \lesssim 6$ K.

1.3.2.2 Hyperfeinstruktur im externen Magnetfeld

Wird ein externes Magnetfeld \vec{B} angelegt, tragen auch die elektronische und nukleare Zeeman-Wechselwirkung \hat{H}_Z , \hat{H}_z zur HFS bei. Der elektronische Zeeman-Effekt lässt sich dabei in einen linearen Anteil $\hat{H}_Z^{(1)}$ und einen quadratischen Anteil $\hat{H}_Z^{(2)}$ unterteilen. Da diese ebenso wie (1.4) vom Gesamtdrehimpuls J abhängen, ergibt sich in zweiter Ordnung Störungsrechnung [60]:

$$\hat{H}_Z^{(1)} = -2g_J\mu_B A_J \vec{B} \cdot \hat{\Lambda} \cdot \vec{I} \quad (1.15a)$$

$$\hat{H}_Z^{(2)} = -g_J^2\mu_B^2 \vec{B} \cdot \hat{\Lambda} \cdot \vec{B} \quad (1.15b)$$

Hierbei ist g_J der Landé g-Faktor der Elektronen und μ_B das Bohrsche Magneton. Der quadratische Zeeman-Effekt (1.15b) führt zu einer gleichförmigen Verschiebung aller Hyperfeinniveaus eines J -Multipletts. Die identische Änderung der optischen Übergangsfrequenzen ist zudem bei den hier verwendeten Magnetfeldern sehr gering, so dass $\hat{H}_Z^{(2)}$ im Folgenden vernachlässigt werden kann.

Der nukleare Zeeman-Effekt ist durch die direkte Wechselwirkung des Magnetfeldes mit dem Kernspin gegeben:

$$\hat{H}_z = -g_I\mu_N \vec{B} \cdot \hat{E} \cdot \vec{I} \quad (1.16)$$

Hierbei ist g_I der Landé g-Faktor des Kerns, μ_N das Kernmagneton und \hat{E} die Einheitsmatrix. Aufgrund der ähnlichen Gestalt können $\hat{H}_Z^{(1)}$ und \hat{H}_z analog zu (1.11) zu einem effektiven Zeeman-Hamiltonoperator zusammengefasst werden [50,58]:

$$\hat{H}_{EZ} = \vec{B} \cdot \hat{M} \cdot \vec{I} \quad \text{mit} \quad \hat{M} = R_{C_2} \cdot R_M \cdot \begin{pmatrix} g_x & 0 & 0 \\ 0 & g_y & 0 \\ 0 & 0 & g_z \end{pmatrix} \cdot R_M^T \cdot R_{C_2}^T \quad (1.17)$$

Dabei sind die Diagonalelemente durch $g_i = g_I\mu_N + 2g_J\mu_B A_J \Lambda_{ii}$ mit $i \in \{x, y, z\}$ gegeben. Die äußere Rotation berücksichtigt wiederum eine mögliche Transformation in die zweite Lage und ist durch (1.13) gegeben. Die innere Rotation verläuft analog zu (1.12), allerdings mit unterschiedlichen Winkeln (α_M , β_M , γ_M) da \hat{M} und \hat{Q} im Allgemeinen nicht die gleichen Hauptachsensysteme aufweisen.

Die vollständige Beschreibung der magnetfeldabhängigen HFS eines Kristallfeldzustandes ist für beide Lagen A und B somit durch

$$\hat{H}_{HFS} = \vec{I} \cdot \hat{Q} \cdot \vec{I} + \vec{B} \cdot \hat{M} \cdot \vec{I} \quad (1.18)$$

gegeben. Diese Gleichung hängt von insgesamt 13 Parametern (E , D , g_x , g_y , g_z , α_Q , β_Q , γ_Q , α_M , β_M , γ_M , α_{C_2} , β_{C_2}) ab, welche mittels Spinechotechniken und aufwendigen Regressionsalgorithmen experimentell bestimmt werden können [50,58].

Analog zur Diskussion des vorigen Abschnitts kann aus (1.18) die magnetfeldabhängige Lage der Hyperfeinniveaus bzw. das zugehörige Zeeman-Spektrum berechnet werden. Ebenso lassen sich aus (1.18) die relativen Oszillatorstärken $f(|^3H_4(0), m_i\rangle \leftrightarrow |^1D_2(0), m_j\rangle)$ für jedes Feld \vec{B} angeben.

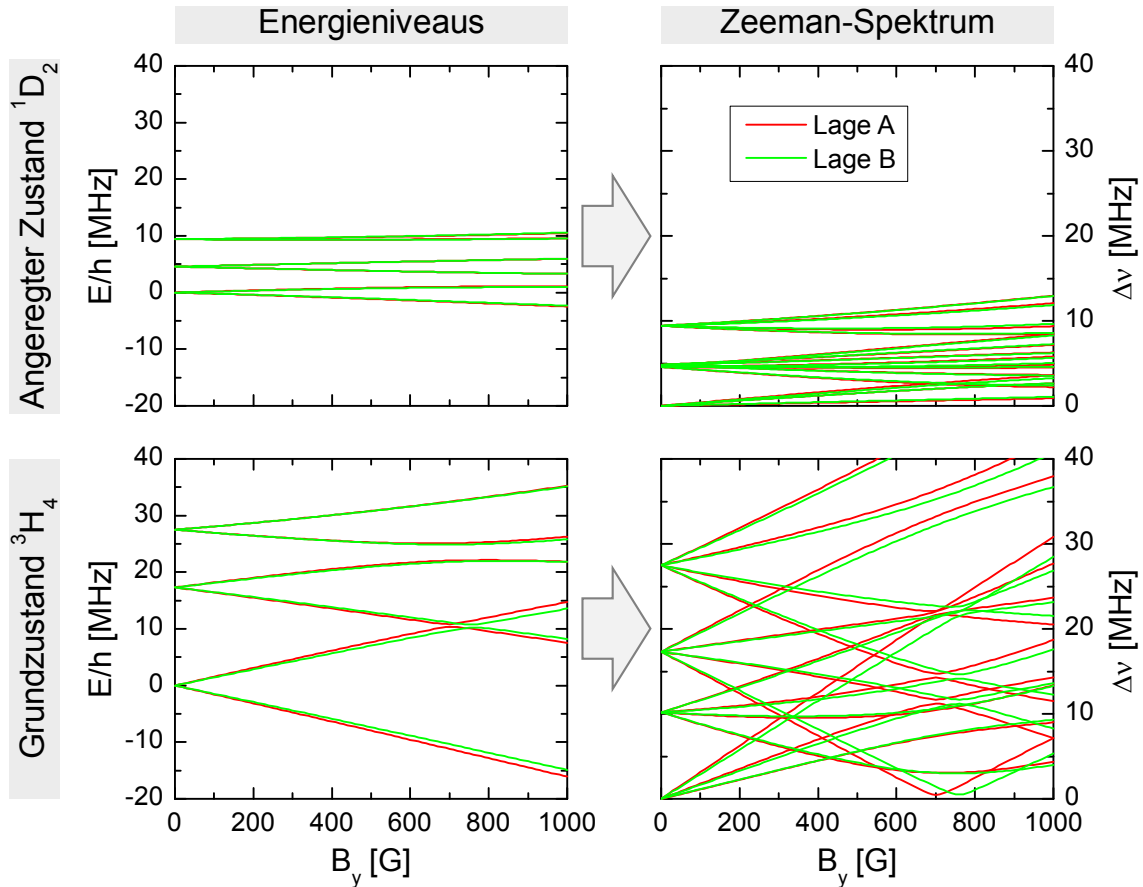


Abbildung 1.4: Berechnete Lage der Hyperfeinniveaus (links) und das daraus resultierende Zeeman-Spektrum (rechts) für den angeregten Zustand 1D_2 (oben) und den Grundzustand 3H_4 (unten) gegen ein externes Magnetfeld B_y . Werte für Ionen der magnetischen Lage A sind als rote (—), der Lage B als grüne Linien (—) dargestellt. Die Energieverschiebung wurde auf das jeweils niedrigste Hyperfeinniveau im entarteten, d.h. feldfreien Fall normiert.

Abbildung 1.4 zeigt exemplarisch die Abhängigkeit der HFS (linke Spalte) von einem in y-Richtung angelegten Magnetfeld. Aus den Differenzen der Energieniveaus berechnet sich das jeweilige Zeeman-Spektrum (rechte Spalte), welches experimentell vermessen werden kann (s. Kap. 6.1.3). Die im feldfreien Fall entarteten Hyperfeinniveaus werden durch das Magnetfeld B_y aufgespalten. Dabei ist die Aufspaltung im Grundzustand 3H_4 deutlich ausgeprägter als im angeregten Zustand 1D_2 . Aufgrund der sechs Niveaus entstehen pro magnetischer Lage und elektronischem Zustand 15 Hyperfeinübergänge. Dabei fällt auf, dass der Unterschied zwischen Lage A und B relativ gering ausfällt. Dies liegt daran, dass das Magnetfeld nahezu orthogonal zur C_2 -Achse des Kristalls variiert wurde. Die Rotation (1.13) wirkt sich daher nur sehr schwach aus. Erst wenn der Feldvektor \vec{B} mehrere nicht-verschwindende Komponenten in mindestens zwei Raumrichtungen besitzt, wird die Symmetrie des Kristalls gebrochen, und Lage A und B unterscheiden sich deutlich. Dann können 2×36 optische Übergänge beobachtet werden.

Aufgrund der oben dargestellten Komplexität beschränkte sich bislang die überwiegende Zahl der Experimente an seltenerd-dotierten Festkörper auf den

magnetfeldfreien Fall. Allerdings erlaubt die externe Kontrolle der Hyperfeinniveaus eine direkte Manipulation der Dekohärenzeigenschaften des Mediums [65]. So ist z.B. die Verlängerung der Kohärenzzeit eines Hyperfeinüberganges ein zentrales Ziel dieser Arbeit. In Kapitel 6 und 7 werden daher bewusst solch komplexe Situationen wie in Abbildung 1.4 dargestellt erzeugt und kontrolliert.

1.4 Linienverbreiterungen

Seltenerd-dotierte Festkörper weisen im Vergleich zu anderen Festkörpermedien außergewöhnlich schmale Spektrallinien auf [42, 43]. Beispielsweise liegt die homogene Linienbreite Γ_{hom} der optischen Übergänge zwischen den niedrigsten Kristallfeldzuständen typischerweise im Bereich weniger kHz [47, 54, 66, 67]. Die homogene Linienbreite entspricht der spektralen Verbreiterung des relevanten Übergangs innerhalb eines einzelnen Ions und berechnet sich gemäß $\Gamma_{hom} = 1/(\pi T_2)$ aus der Kohärenzzeit T_2 des Übergangs. Zur homogenen Verbreiterung tragen eine Reihe von Effekten bei [46, 54]:

$$\Gamma_{hom} = \Gamma_{nat} + \Gamma_{ion-spin} + \Gamma_{ion-ion} + \Gamma_{phonon} \quad (1.19)$$

Die natürliche Linienbreite Γ_{nat} entsteht durch Besetzungszerrfall des angeregten Niveaus. Sie wird gemäß $\Gamma_{nat} = 1/(2\pi T_1)$ aus der Lebensdauer T_1 des Übergangs berechnet. Die Linienverbreiterung $\Gamma_{ion-spin}$ wird durch Wechselwirkungen der Ionen mit fluktuierenden Kern- und Elektronenspins verursacht. Der Beitrag $\Gamma_{ion-ion}$ wird durch elektrostatische Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zwischen den Ionen hervorgerufen. Schließlich ergibt sich Γ_{phonon} aus phononischen Anregungen und Relaxationen höherer Kristallfeldzustände.

Im Fall reinen Strahlungszerrfalls ohne weitere Dekohärenzen beträgt die Kohärenzzeit T_2 maximal das Doppelte der Lebensdauer T_1 . Im Allgemeinen ist T_2 aufgrund von Dekohärenzprozessen aber deutlich kleiner als T_1 . Tabelle 1.3 gibt eine Übersicht der für diese Arbeit relevanten Zerfallsdauern bzw. der entsprechenden Linienverbreiterungen in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Neben den Lebensdauern und Kohärenzzeiten wurde hier auch die Dephasierungszeit T_{deph} der Hyperfeinniveaus im Grundzustand mit aufgenommen. Diese rührt von der inhomogenen Verbreiterung der magnetischen Hyperfeinübergänge innerhalb des Grundzustandes 3H_4 her (s. Kap. 2.3.4).

Anhand Tabelle 1.3 wird ersichtlich, welche Prozesse sich am kritischsten auf eine Speicherung von optischer Information in $\text{Pr}:\text{YSO}$ auswirken. Bei einer Speicherung als optische Kohärenz (s. Kap. 2) ist die Speicherzeit Δt durch $T_2^* = 111 \mu\text{s}$ beschränkt. Bei einer Speicherung als Spinkohärenz wird Δt durch $T_{deph} \sim 10 \mu\text{s}$ limitiert. Ziel dieser Arbeit ist es, die Speicherzeit einer Spinkohärenz um mehrere Größenordnungen, über die Kohärenzzeit T_2 hinaus, bis in den Bereich der Spinrelaxationsdauer $T_1 \sim 100 \text{s}$ zu erhöhen (s. Kap. 6 und 7).

Eine intrinsische Eigenschaft dotierter Festkörper ist eine vergleichsweise große inhomogene Verbreiterung der optischen Übergänge [70]. Diese entsteht durch räumliche Inhomogenitäten des Kristallgitters aufgrund von Verspannungen oder chemischen Verunreinigungen bei der Zucht des Kristalls. Die resultierenden

Tabelle 1.3: Zerfallsdauern bzw. spektroskopische Verbreiterungen des optischen Übergangs $^1D_2 \rightarrow ^3H_4$ und der Hyperfeinübergänge innerhalb des Grundzustandes.

Prozess	Zeiten			Linienbreiten	Quelle
Opt. Überg.	nat. Lebensdauer	$T_1^* = 164 \mu\text{s}$	\leftrightarrow	$\Gamma_{nat}^{opt} = 970 \text{ Hz}$	[54]
	Kohärenzzeit	$T_2^* = 111 \mu\text{s}$	\leftrightarrow	$\Gamma_{hom}^{opt} = 2,9 \text{ kHz}$	[54]
HFS-Überg.	Relaxationsdauer	$T_1 \sim 100 \text{ s}$	\leftrightarrow	$\Gamma_{relax}^{pop} \sim 1,6 \text{ mHz}$	[64]
	Kohärenzzeit	$T_2 \sim 500 \mu\text{s}$	\leftrightarrow	$\Gamma_{hom}^{HFS} \sim 300 \text{ Hz}$	[68]
	Dephasierungszeit	$T_{deph} \sim 10 \mu\text{s}$	\leftrightarrow	$\Gamma_{inhom}^{HFS} \sim 30 \text{ kHz}$	[61, 69]

Ladungsträgerdefekte führen zu elektrischen Feldgradienten, und somit zu einer örtlichen Variation der Kristallfeldaufspaltung. Der optische Übergang zwischen den Kristallfeldniveaus besitzt daher für verschiedene Klassen von Dotierungsionen unterschiedliche Übergangsfrequenzen. Diese Klassen werden im Folgenden als *Ensemble* bezeichnet. Abbildung 1.5 stellt diesen Sachverhalt schematisch dar.

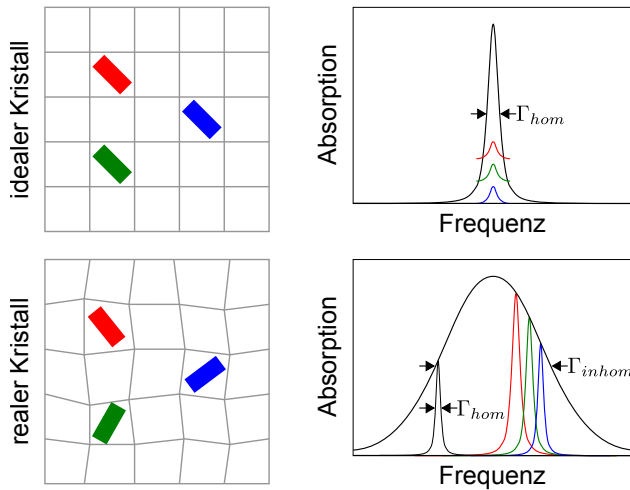


Abbildung 1.5: Die inhomogene Linienbreite entsteht im realen Kristall aus einer inhomogenen Überlagerung verschiedener homogener Linienprofile. Die Darstellung ist einer Abbildung in [71] nachempfunden.

Typische inhomogene Verbreiterungen der optischen Übergänge in seltenerd-dotierten Medien liegen im Bereich von $\Gamma_{inhom}^{opt} \simeq 1 - 10 \text{ GHz}$ [43]. Die Werte sind allerdings stark abhängig von der Dotierungskonzentration. Aufgrund der unterschiedlichen Ionenradien von Substituent und dotiertem Ion führt eine erhöhte Konzentration zu stärkeren mechanischen Verspannungen des Kristallgitters bzw. einer höheren Breite Γ_{inhom}^{opt} [42]. Dies ist auch der Grund dafür, dass die optische Dichte $\alpha_0 L$ zunehmend schwächer mit der Dotierungskonzentration anwächst.³ Der in dieser Arbeit genutzte Kristall weist eine inhomogene Breite von $\Gamma_{inhom}^{opt} \approx 7 \text{ GHz}$ bei einer Dotierung von $0,02 \text{ at.}\%$ auf [72, 73]. Das große Verhältnis von inhomogener zu homogener Linienbreite ermöglicht die parallele Adressierung mehrerer Ensembles und machte die hier vorgestellten Medien bereits vor Jahrzehnten interessant für die optische Datenspeicherung [74–78].

³Ebenso wirken sich höhere Dotierungskonzentrationen infolge der stärkeren Wechselwirkungen zwischen den Ionen negativ auf Lebensdauern und Kohärenzeigenschaften aus.

Kapitel 2

Kohärente Wechselwirkung von Licht und Materie

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente basieren auf der Wechselwirkung von kohärenter Strahlung mit den im Wirtskristall Y_2SiO_5 dotierten Praseodym-Ionen. Zentrales Ziel ist die Manipulation der spektralen Eigenschaften der Pr^{3+} -Ionen, um optische Pulse möglichst lange im Medium zu speichern. Dies soll durch den quantenoptischen Effekt der elektromagnetisch induzierten Transparenz [10, 11] realisiert werden. EIT ermöglicht den reversiblen Übertrag von optischer Information auf die stationären, atomaren Eigenschaften eines Mediums [7, 79]. Auf Basis von EIT können Quantenspeicher realisiert werden, welchen in der Quanteninformationsverarbeitung eine fundamentale Bedeutung zukommt [4, 5].

Im Laufe dieses Kapitels wird zuerst das hier relevante Niveausystem betrachtet. Anschließend werden die grundlegenden Eigenschaften von EIT diskutiert, bevor der zentrale Speichermechanismus auf Basis von EIT erläutert wird.

2.1 Dreiniveausystem

Im Folgenden wird ein Dreiniveausystem in Λ -Konfiguration betrachtet (s. Abb. 2.1). Es besteht aus zwei metastabilen Grundzuständen $|1\rangle$, $|3\rangle$ mit den Energien E_1 , E_3 , sowie dem angeregten Zustand $|2\rangle$ der Energie E_2 . Die zugehörigen Resonanzfrequenzen sind durch $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$ gegeben. Das System wechselwirkt in Dipol-Näherung mit optischem Kontroll- bzw. Nachweisfeld:

$$\vec{\mathcal{E}}_K(t) = \frac{1}{2}\vec{\mathcal{E}}_K^0(t)(e^{i\omega_K t} + e^{-i\omega_K t}), \quad \vec{\mathcal{E}}_N(t) = \frac{1}{2}\vec{\mathcal{E}}_N^0(t)(e^{i\omega_N t} + e^{-i\omega_N t}) \quad (2.1)$$

Die Frequenzen der Laserfelder sind durch $\omega_K = \omega_{23} - \Delta_K$ und $\omega_N = \omega_{21} - \Delta_N$ gegeben, wobei die Einphotonenverstimmungen Δ_K bzw. Δ_N eingeführt wurden. Typischerweise wird der Fall einer nahresonanten Anregung betrachtet, d.h. es gilt $\Delta \ll \omega_{ij}$.

Die Dynamik des Systems unter Einfluss des Gesamtfeldes $\vec{\mathcal{E}}(t) = \vec{\mathcal{E}}_K(t) + \vec{\mathcal{E}}_N(t)$ wird durch die zeitabhängige Schrödingergleichung beschrieben:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \hat{H} |\Psi(t)\rangle \quad (2.2)$$

Hierbei ist $|\Psi(t)\rangle$ der Zustandsvektor, welcher sich mittels zeitabhängiger Wahrscheinlichkeitsamplituden $c_i(t)$ in der Basis der Eigenzustände des Systems $|1\rangle$, $|2\rangle$ und $|3\rangle$ ausdrücken lässt:

$$|\Psi(t)\rangle = c_1(t)|1\rangle + c_2(t)|2\rangle + c_3(t)|3\rangle \quad (2.3)$$

\hat{H} ist der Hamiltonoperator, welcher sich aus dem Operator des ungestörten Systems $\hat{H}_0 = \sum_{i,j} E_i \delta_{ij}$ und dem Wechselwirkungsoperator $V_{ij} = -\mu_{ij} \cdot \vec{\mathcal{E}}(t)$ zusammensetzt:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V} = \begin{pmatrix} E_1 & -\mu_{12}\vec{\mathcal{E}}(t) & 0 \\ -\mu_{21}\vec{\mathcal{E}}(t) & E_2 & -\mu_{23}\vec{\mathcal{E}}(t) \\ 0 & -\mu_{32}\vec{\mathcal{E}}(t) & E_3 \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

Hierbei wurden die atomaren Dipolübergangsmomente $\mu_{ij} = -e\langle i|\vec{r}|j\rangle = \mu_{ji}^*$ eingeführt. Des Weiteren wurde angenommen, dass der Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ dipolverboten ist und dass permanente Momente vernachlässigt werden können.

Eine vereinfachte Analyse der Dynamik ergibt sich, wenn (2.3) und (2.4) durch Wahl geeigneter Zustandsphasen $\zeta_i(t)$, d.h. $c_i(t) \rightarrow c_i(t)e^{-i\zeta_i(t)}$, ins Diracsche Wechselwirkungsbild transformiert werden [80]. Mit

$$\zeta_1(t) = E_1 t / \hbar, \quad \zeta_2(t) = \zeta_1(t) + \omega_N t, \quad \zeta_3(t) = \zeta_1(t) + \omega_N t - \omega_K t \quad (2.5)$$

und den Rabi-Frequenzen

$$\Omega_K(t) = -\frac{\mu_{23}\mathcal{E}_K^0(t)}{\hbar}, \quad \Omega_N(t) = -\frac{\mu_{12}\mathcal{E}_N^0(t)}{\hbar} \quad (2.6)$$

ergibt sich:

$$\hat{H}_{Dirac} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_N(1 + e^{i2\omega_N t}) & 0 \\ \Omega_N^*(1 + e^{-i2\omega_N t}) & 2\Delta_N & \Omega_K^*(1 + e^{-i2\omega_K t}) \\ 0 & \Omega_K(1 + e^{i2\omega_K t}) & 2(\Delta_N - \Delta_K) \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

Ist die Oszillation der Lichtfelder deutlich schneller als die Dynamik des Systems, d.h. $\omega \gg \Omega$ sowie $\omega \gg \Omega^{-1} \frac{d}{dt} \Omega$, kann (2.7) weiter vereinfacht werden. In der Drehwellennäherung (RWA, engl. *rotating wave approximation*) mitteln sich die Exponentialterme auf der systemischen Zeitskala zu $\langle e^{\pm i2\omega t} \rangle = 0$ und können vernachlässigt werden:

$$\hat{H}_{RWA} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_N & 0 \\ \Omega_N & 2\Delta_N & \Omega_K \\ 0 & \Omega_K & 2(\Delta_N - \Delta_K) \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

Außerdem wurden in (2.8) reelle Rabi-Frequenzen angenommen. Dies ist für vollständig kohärente Felder gerechtfertigt.

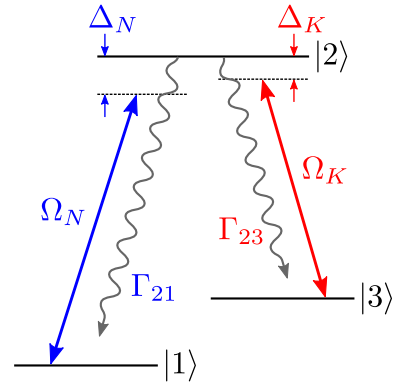


Abbildung 2.1: Dreineiveausystem in Λ -Konfiguration.

Instantane Eigenzustände bei Zweiphotonenresonanz

Ein wichtiger Spezialfall tritt auf, wenn die Einphotonenverstimmungen der beiden Laserfelder identisch gewählt werden ($\Delta_K = \Delta_N \equiv \Delta$). Kontroll- und Nachweisfeld sind dann in Zweiphotonenresonanz mit dem Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ und der Hamiltonoperator (2.8) vereinfacht sich entsprechend. Durch Diagonalisieren von (2.8) findet man die Eigenwerte ϵ und Eigenvektoren $|\Phi\rangle$ des Systems:

$$\begin{aligned} \epsilon_0 &= 0, & |\Phi_0\rangle &= [\Omega_K|1\rangle - \Omega_N|3\rangle] / \mathcal{N}_0 \\ \epsilon_{\pm} &= \frac{\hbar}{2}(\Delta \pm \Upsilon), & |\Phi_{\pm}\rangle &= [\Omega_N|1\rangle + (\Delta \pm \Upsilon)|2\rangle + \Omega_K|3\rangle] / \mathcal{N}_{\pm} \end{aligned} \quad (2.9)$$

Hierbei sind \mathcal{N} Normierungsfaktoren und $\Upsilon = \sqrt{\Delta^2 + \Omega_K^2 + \Omega_N^2}$ die Eigenwertaufspaltung. Die Eigenvektoren $|\Phi\rangle$ bilden ebenso wie die ungestörten Zustände $|i\rangle$ zu jedem Zeitpunkt t eine Basis des Systems und werden daher auch als instantane Eigenzustände oder adiabatische Zustände bezeichnet. Diese lassen sich alternativ auch in einer trigonometrischen Form darstellen:

$$\begin{aligned} |\Phi_0\rangle &= \cos \Theta |1\rangle - \sin \Theta |3\rangle \\ |\Phi_{-}\rangle &= \sin \Theta \cos \phi |1\rangle - \sin \phi |2\rangle + \cos \Theta \cos \phi |3\rangle \\ |\Phi_{+}\rangle &= \sin \Theta \sin \phi |1\rangle + \cos \phi |2\rangle + \cos \Theta \sin \phi |3\rangle \end{aligned} \quad (2.10)$$

Dabei sind die Mischungswinkel Θ und ϕ wie folgt definiert:

$$\tan \Theta = \frac{\Omega_N}{\Omega_K}, \quad \tan \phi = \frac{\Upsilon - \Delta}{\sqrt{\Omega_K^2 + \Omega_N^2}} \quad (2.11)$$

Die Zustände $|\Phi\rangle_{\pm}$ besitzen Anteile des angeregten Zustandes $|2\rangle$, welcher im Allgemeinen strahlend zerfallen kann. Diese werden daher auch als Hellzustände bezeichnet. Im Gegensatz dazu besteht $|\Phi_0\rangle$ lediglich aus einer Linearkombination der Grundzustände und wird daher auch Dunkelzustand genannt.

Der Dunkelzustand ist aufgrund der unterdrückten Kopplung an den verlustbehafteten Zustand $|2\rangle$ für die in dieser Arbeit durchgeführten Speicherexperimente von besonderem Interesse. Wird nur das Kontrollfeld eingestrahlt, d.h. $\Omega_N = 0$, so ergibt sich aus (2.11) $\Theta = 0$. Ist außerdem die Einphotonenresonanz $\Delta = 0$ erfüllt, gilt $\phi = \pi/4$. Die adiabatischen Zustände (2.10) lauten dann:

$$\begin{aligned} |\Phi_0\rangle &= |1\rangle \\ |\Phi_{\pm}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} [|3\rangle \pm |2\rangle] \end{aligned} \quad (2.12)$$

Der Dunkelzustand $|\Phi_0\rangle$ stimmt also in diesem Fall mit dem Grundzustand $|1\rangle$ überein. Wird nun das Nachweisfeld variiert, d.h. $\Omega_N \neq 0$, kommt es gemäß (2.10) wieder zu einer Superposition innerhalb aller adiabatischen Zustände. Geschieht diese Änderung allerdings hinreichend langsam, d.h. adiabatisch, verbleibt das System aufgrund der Orthogonalität der adiabatischen Zustände im ursprünglichen Zustand. Somit ist es prinzipiell möglich, Information in Form einer kohärenten Überlagerung der metastabilen Zustände $|1\rangle$ und $|3\rangle$ zu speichern, ohne mit dem verlustbehafteten Zustand $|2\rangle$ zu wechselwirken.

2.2 Makroskopische Systeme

Bislang wurde lediglich ein einzelnes, ideales Quantensystem betrachtet, welches sich in einem reinen Zustand $|\Psi\rangle = \sum_n c_n |\psi_n\rangle$ befindet.¹ Der Zustand des Systems lässt sich dann alternativ auch mittels der Dichtematrix

$$\hat{\rho} = |\Psi\rangle\langle\Psi| \quad (2.13)$$

beschreiben [81]. In der Basis $\{|\psi_n\rangle\}$ gilt:

$$\hat{\rho} = \sum_{i,j} c_i c_j^* |\psi_i\rangle\langle\psi_j| \quad (2.14)$$

Die Matrixelemente sind hierbei durch das Produkt der Wahrscheinlichkeitsamplituden gemäß $\rho_{ij} = c_i c_j^* = \rho_{ji}^*$ gegeben. Die Diagonalelemente ρ_{ii} entsprechen den Besetzungswahrscheinlichkeiten (Populationen) der Zustände $|\psi_i\rangle$. Die Nichtdiagonalelemente ρ_{ij} ($i \neq j$) werden als *Kohärenzen* bezeichnet. Diese geben an, welche (kohärente) Superposition aus den Zuständen $|\psi_i\rangle$ und $|\psi_j\rangle$ vorliegt. Sind die Zustände gleich besetzt ($c_i = c_j = 0,5$) nimmt die Kohärenz den maximal möglichen Wert an.

Reale Systeme bestehen allerdings meist aus einer Vielzahl von Einzelsystemen, welche mit verschiedenen Wahrscheinlichkeiten p_k in unterschiedlichen Zuständen $|\Psi_k\rangle$ vorliegen können. Die Dichtematrix einer solchen, gemischten Gesamtheit ist durch

$$\hat{\rho} = \sum_k p_k |\Psi_k\rangle\langle\Psi_k| \quad (2.15)$$

gegeben. Die Populationen bzw. Kohärenzen sind in diesem Fall lediglich die statistischen Mittel über das betrachtete Ensemble ($\rho_{ij} \rightarrow \langle c_i c_j^* \rangle$).

Die Dynamik der quantenmechanischen Gesamtheit wird in beiden Fällen durch die Liouville-von-Neumann-Gleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho} = [\hat{H}, \hat{\rho}] + i\hbar \hat{D} \quad (2.16)$$

beschrieben. Hierbei wurde der Dissipator \hat{D} eingeführt, welcher Relaxationen von Populationen und Kohärenzen aufgrund von spontaner Emission und dekohärenten Effekten beschreibt. Für das betrachtete Λ -System ist der Dissipator durch

$$\hat{D} = \begin{pmatrix} \Gamma_{21}\rho_{22} & -\gamma_{12}\rho_{12} & -\gamma_{13}\rho_{13} \\ -\gamma_{21}\rho_{21} & -(\Gamma_{21} + \Gamma_{23})\rho_{22} & -\gamma_{23}\rho_{23} \\ -\gamma_{31}\rho_{31} & -\gamma_{32}\rho_{32} & \Gamma_{23}\rho_{22} \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

gegeben. Auf der Diagonalen stehen die Zerfallsraten Γ_{ij} der internen spontanen Emission, welche durch die natürliche Lebensdauer $T_1 \sim 1/\Gamma_{ij}$ des Übergangs gegeben sind. Die Nichtdiagonalelemente sind durch die Dekohärenzraten

$$\gamma_{ij} = \frac{1}{2} \sum_k \Gamma_{ik} + \frac{1}{2} \sum_k \Gamma_{jk} + \gamma'_{ij} \quad (2.18)$$

¹Von einem reinen Zustand spricht man, wenn sich das System durch einen eindeutigen Satz von Wahrscheinlichkeitsamplituden c_n als Vektor $|\Psi\rangle$ in einem Hilbertraum beschreiben lässt.

gegeben. Hierbei beschreiben die ersten beiden Beiträge den Kohärenzverlust aufgrund des internen spontanen Zerfalls. Der letzte Term γ'_{ij} berücksichtigt weitere dekohärente Verluste wie z.B. stochastische Wechselwirkungen mit der Umgebung (s. auch Kap. 6.2.2). Zur vereinfachten Beschreibung wird meist statt der einzelnen Beiträge die generalisierte Kohärenzzeit $T_2 = 1/(\pi\gamma_{ij})$ als Maß für den Kohärenzzerfall angegeben.

Mittels des hier vorgestellten Dichtematrix-Formalismus lässt sich somit die Dynamik atomarer Systeme unter Berücksichtigung dekohärenter Effekte beschreiben. Dies bildet die Grundlage der in dieser Arbeit durchgeführten Berechnungen zur kohärenten Wechselwirkung von Licht und Materie und findet insbesondere in Kapitel 2.3.1 und 2.3.3 Anwendung.

2.3 Adiabatische Lichtspeicherung

Die Lichtspeicherung beruht auf der Transformation eines optischen Pulses in eine kollektive, kohärente Superposition atomarer Zustände. Im Rahmen dieser Arbeit wird dies mittels EIT realisiert, welche eine direkte Manipulation der Dispersions-eigenschaften des Mediums durch kohärente Kopplungen ermöglicht.

In diesem Abschnitt werden die Grundlagen der EIT eingeführt. Anschließend wird die Lichtspeicherung mittels EIT erläutert, bevor auf die experimentell relevanten Punkte der Pulspropagation und der Speichereffizienz eingegangen wird.

2.3.1 Elektromagnetisch induzierte Transparenz

EIT [10, 11] ist ein Quanteninterferenzeffekt, welcher die Kontrolle der Absorptions- und Dispersionseigenschaften eines Mediums ermöglicht. EIT wird typischerweise in atomaren Dreinevensystemen unter Einfluss eines intensiven Kontroll- und eines schwachen Nachweisfeldes ($\Omega_K \gg \Omega_N$) implementiert.

Um den Einfluss der Felder auf das atomare System zu veranschaulichen, wird der Absorptionskoeffizient α sowie der Brechungsindex n für das Nachweisfeld betrachtet. Diese hängen gemäß

$$\alpha = \frac{2\pi}{\lambda} \text{Im}(\chi) \quad \text{und} \quad n = \sqrt{1 + \text{Re}(\chi)} \quad (2.19)$$

von Real- bzw. Imaginärteil der elektrischen Suszeptibilität χ ab, wobei λ die Vakuumwellenlänge der einfallenden Strahlung ist. Der lineare Anteil der Suszeptibilität ist durch

$$\chi = -\frac{2\rho\mu_{12}}{\epsilon_0\mathcal{E}_N}\rho_{12} \quad (2.20)$$

gegeben, wobei ρ die atomare Dichte bezeichnet. Die hierbei auftretende Kohärenz ρ_{12} kann nun mittels des in Kapitel 2.2 eingeführten Formalismus bestimmt werden. Hierzu wird die Liouville-von-Neumann-Gleichung (2.16) unter Verwendung des Hamiltonoperators (2.8) und des Dissipators (2.17) für den stationären

Fall $\frac{\partial}{\partial t}\hat{\rho} = 0$ gelöst. Dabei wird neben der Annahme eines schwachen Nachweisfeldes ($\Omega_K \gg \Omega_N \Rightarrow \rho_{11} \approx 1$) auch ein verschwindender Dekohärenzanteil γ'_{ij} des Dissipators angenommen. Es ergibt sich:

$$\rho_{12} = \frac{\Omega_N}{2} \frac{i\gamma_{13} + \Delta_N - \Delta_K}{(i\gamma_{13} + \Delta_N - \Delta_K)(i\gamma_{12} + \Delta_N) - (\Omega_K/2)^2} \quad (2.21)$$

Für Real- und Imaginärteil der linearen Suszeptibilität folgt somit:

$$\text{Im}(\chi) = \frac{\rho|\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{\gamma_{12}(\gamma_{13}^2 + \delta^2) + \gamma_{13}(\Omega_K/2)^2}{(\gamma_{13}^2 + \delta^2)(\gamma_{12}^2 + \Delta_N^2) + 2(\gamma_{12}\gamma_{13} + \delta\Delta_N)(\Omega_K/2)^2 + (\Omega_K/2)^4} \quad (2.22)$$

$$\text{Re}(\chi) = \frac{\rho|\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{- (\gamma_{13}^2 + \delta^2) \Delta_N - \delta(\Omega_K/2)^2}{(\gamma_{13}^2 + \delta^2)(\gamma_{12}^2 + \Delta_N^2) + 2(\gamma_{12}\gamma_{13} + \delta\Delta_N)(\Omega_K/2)^2 + (\Omega_K/2)^4} \quad (2.23)$$

wobei $\delta = \Delta_K - \Delta_N$ ist. Das sich hieraus ergebende Absorptions- und Dispersionsverhalten ist in Abbildung 2.2 für verschiedene Konfigurationen der Parameter Ω_K , Δ_K und γ_{13} dargestellt.

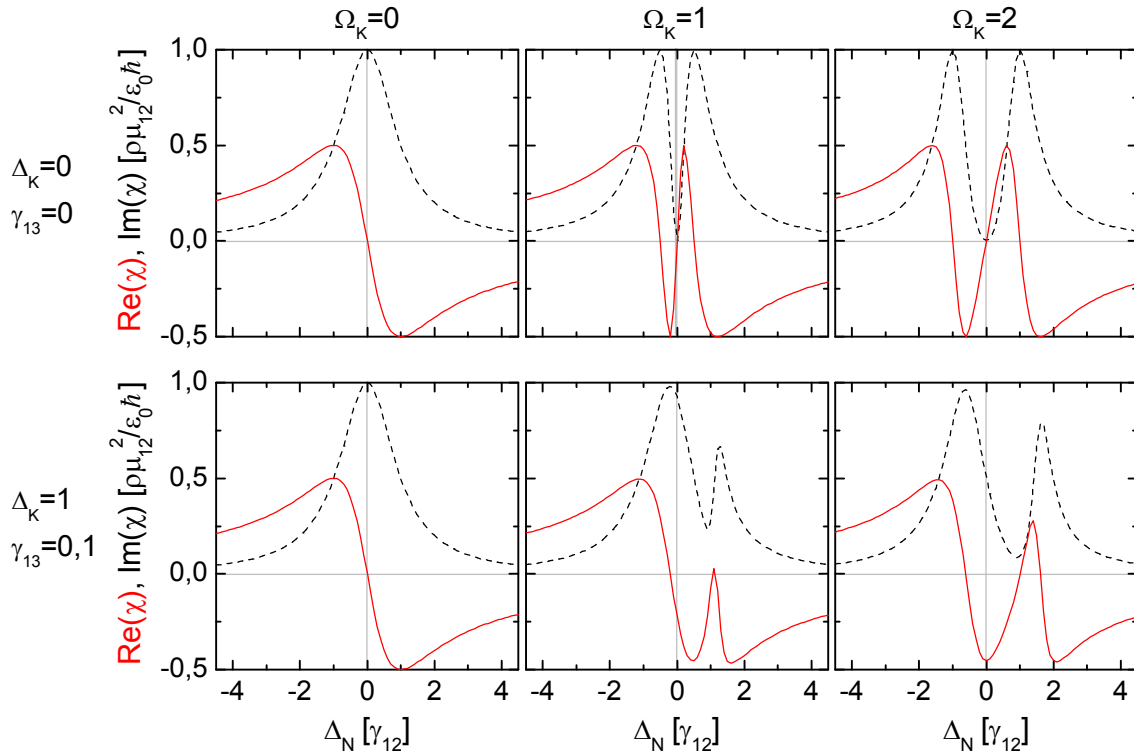


Abbildung 2.2: Dispersion ($\text{Re}(\chi)$ —) und Absorption ($\text{Im}(\chi)$ ---) in Abhängigkeit der Einphotonenverstimmung des Nachweisfeldes Δ_N für drei verschiedene Rabi-Frequenzen des Kontrollfeldes: $\Omega_K = 0$, $\Omega_K = 1$, $\Omega_K = 2$ (links nach rechts). Obere Reihe: $\Delta_K = 0$, $\gamma_{13} = 0$. Untere Reihe: $\Delta_K = 1$, $\gamma_{13} = 0, 1$. Alle Angaben in Einheiten von γ_{12} .

In der oberen Reihe ist der ideale Fall eines vollständig resonanten Kontrollfeldes ($\Delta_K = 0$) und einer vernachlässigbaren Zerfallsrate der Grundzustandskohärenz ($\gamma_{13} = 0$) gezeigt. Wird kein Kontrollfeld eingestrahlt ($\Omega_K = 0$), ergibt sich der

erwartete Absorptions- und Dispersionsverlauf des durch γ_{12} homogen verbreiterten Übergangs $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$. Ist das Kontrollfeld hingegen ungleich Null ($\Omega_K = 1$, $\Omega_K = 2$) ändert sich die Situation grundlegend. Auf der Resonanz ($\Delta_N = 0$) verschwinden nun Real- und Imaginärteil der Suszeptibilität. Nach (2.19) bedeutet dies vollständige Transmission des Nachweisfeldes auf der Resonanz. Der charakteristische, scharfe Einbruch der Absorption für $\delta = 0$ belegt hierbei den Quanteninterferenzeffekt (Fano-Interferenz). Die hohe Transparenz ist somit nicht auf eine einfache Aufspaltung der Niveaus durch den Stark-Effekt (Autler-Townes Aufspaltung [82]) zurückzuführen [83, 84]. Für vernachlässigbare γ_{13} und ein nicht zu schwaches Kontrollfeld [85] hängt die Breite des Absorptionseinbruchs Γ_{EIT} nicht-linear von der Kontroll-Rabi-Frequenz Ω_K ab. Aus (2.22) ergibt sich [10, 79, 86]:

$$2\pi \times \Gamma_{\text{EIT}} = \frac{\Omega_K^2}{\gamma_{12}} \frac{1}{\sqrt{\alpha_0 L}} \quad (2.24)$$

Hierbei ist $\alpha_0 L$ die optische Dichte des Mediums mit dem ursprünglichen Absorptionskoeffizienten α_0 und der Länge L des Mediums.

Die untere Reihe in Abbildung 2.2 zeigt exemplarisch den Fall eines verstimmten Kontrollfeldes ($\Delta_K = 1$) und eines Kohärenzzerfalls von $\gamma_{13} = 0,1$. Wie im idealen Fall beobachtet man ohne Kontrollfeld ($\Omega_K = 0$) lediglich die homogen verbreiterte Absorptionslinie. Für $\Omega_K = 1$ bzw. $\Omega_K = 2$ erkennt man, dass aufgrund der Verstimmung des Kontrollfeldes das Zentrum des Absorptionseinbruchs nun bei $\Delta_N = 1$ liegt. Des Weiteren führt der vorhandene Kohärenzzerfall γ_{13} zu einer unvollständigen Transmission auf der Resonanz $\delta = 0$. Dieser Effekt lässt sich zwar durch höhere Intensitäten des Kontrollfeldes minimieren (vergleiche $\Omega_K = 1$ und $\Omega_K = 2$), führt aber gleichzeitig auch zu einer Erhöhung der Breite des Transmissionsfensters Γ_{EIT} (s. Kap. 2.3.2). Die charakteristischen Merkmale von EIT lassen sich stets beobachten, sofern $|\Omega_K|^2 \gg \gamma_{12}\gamma_{13}$ erfüllt ist [10]. Die Wechselwirkung muss also ausreichend stark sein, um die adiabatischen Zustände weiter als die natürlichen Linienbreiten der beteiligten Zustände aufzuspalten.

2.3.2 Lichtspeicherung mittels EIT

Die Speicherung von Licht beruht auf der durch EIT manipulierten Dispersion des Mediums [7, 79]. Hierzu betrachte man in Abbildung 2.2 den Realteil der linearen Suszeptibilität $\text{Re}(\chi)$, der nach (2.19) den Brechungsindex des Mediums bestimmt. Ohne Kontrollfeld ($\Omega_K = 0$) liegt auf der Zweiphotonenresonanz $\delta = 0$ anomale Dispersion vor ($\omega_N \frac{dn}{d\omega_N} < 1$). Im Falle von EIT besitzt der Dispersionsverlauf dort hingegen eine hohe positive Steigung. Dies führt wegen der Definition der Gruppengeschwindigkeit

$$v_{gr} = \left. \frac{d\omega_N}{dk_N} \right|_{\delta=0} = \frac{c}{n + \omega_N (dn/d\omega_N)} \quad (2.25)$$

zu einer Verlangsamung eines durch das Medium propagierenden Nachweispulses [87]. Neben der hohen positiven Steigung ist der Dispersionsverlauf um $\delta = 0$

linear, d.h. es gibt keine Gruppengeschwindigkeitsdispersion ($d^2n/d\omega^2 = 0$). Dies ist eine entscheidende Voraussetzung zur formstabilen Propagation des Nachweispulses durch das Medium [10].

Die bisherige Diskussion galt für kontinuierliche Lichtfelder. Der Übergang zu Lichtpulsen ist gerechtfertigt, wenn die charakteristische Zeit T währenddessen sich Nachweis- und Kontrollfeld ändern, länger als die optischen Zerfallsdauern ($\sim \Gamma_{ij}^{-1}$) ist. Somit muss gelten:

$$\Gamma_{21}T \gg 1, \quad \Gamma_{23}T \gg 1 \quad (2.26)$$

Aufgrund der sich dann langsam ändernden Rabi-Frequenzen wird obige Forderung auch als adiabatisches Limit bezeichnet. In diesem Fall kann weiterhin der stationäre Ansatz $\frac{\partial}{\partial t}\hat{\rho} = 0$ zur Lösung der Liouville-von-Neumann-Gleichung (2.16) verwendet werden. Für den Fall einer zeitlich konstanten Rabi-Frequenz Ω_K kann (2.25) auch geschrieben werden als [88]:

$$v_{gr} = \frac{c}{1 + n_{gr}} \quad \text{mit} \quad n_{gr} = \alpha_0 c \frac{\gamma_{12}}{\Omega_K^2} \quad (2.27)$$

Anhand obiger Gleichung sowie aus Abbildung 2.2 erkennt man, dass die Gruppengeschwindigkeit des Nachweispulses durch das Kontrollfeld variiert werden kann. Dies ermöglicht die dauerhafte Speicherung des Nachweispulses im Medium. Hierzu wird während der abfallenden Flanke des Nachweispulses die Intensität des Kontrollfeldes (im Folgenden Schreibpuls genannt) adiabatisch verringert ($\Omega_K \rightarrow 0$). Die Dispersion strebt in diesem Fall gegen Unendlich, so dass der Nachweispuls räumlich komprimiert und schließlich zum Stillstand gebracht wird [15, 89]. Hierbei muss allerdings bedacht werden, dass im Gegensatz zu stationärem Licht [90] der Nachweispuls nicht weiterhin als elektromagnetisches Feld vorliegt. Stattdessen wird während des Speicherprozesses eine kohärente Superposition beider Grundzustände $|1\rangle$ und $|3\rangle$ aufgebaut, welche die gesamte Information des Nachweispulses enthält. Die Kohärenz ρ_{13} verharrt als atomare Eigenschaft in einem Festkörper ortsfest und erlaubt unter bestimmten Bedingungen die langlebige Speicherung des Nachweispulses.

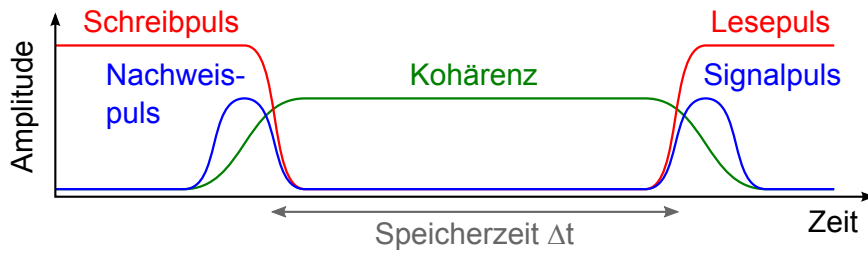


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung einer Lichtspeichersequenz.

Die gespeicherte Information kann nach einer Speicherzeit Δt durch einen weiteren Kontrollpuls (im Folgenden Leseimpuls genannt) wieder ausgelesen werden. Dieser besitzt die Eigenschaften des Schreibpulses, um eine korrekte Rücktransformation der Grundzustandskohärenz in den Signalpuls zu gewährleisten. Im idealen Fall stimmen insbesondere Frequenz, Phase, Polarisation, Ausbreitungsrichtung und Pulsform von Nachweis- und Signalpuls überein. Die Lichtspeicherung

mittels EIT ermöglicht somit eine vollkommen kohärente Speicherung optischer Information und kann daher als grundlegendes Prinzip für Quantenspeicher dienen [4–7]. Der typische Ablauf einer solchen EIT-basierten Lichtspeicherung ist in Abbildung 2.3 dargestellt.

Die Interaktion von Nachweisfeld, Kontrollfeld und Grundzustandskohärenz kann alternativ auch im Bild der Hell- und Dunkلزustände betrachtet werden, welches ein tiefergreifendes Verständnis des Speicherprozesses ermöglicht. Hierbei ist insbesondere das Dunkلزustandspolariton $\Psi(z, t)$ von Interesse, da das System im Dunkلزustand $|\Phi_0\rangle$ präpariert wurde (s. Kap. 2.1). Das Dunkلزustandspolariton ist ein Quasiteilchen, welches aus einer elektromagnetischen Komponente (dem Nachweisfeld \mathcal{E}_N) und einer kollektiven atomaren Komponente (der Kohärenz ρ_{13}) besteht [88, 89]:

$$\Psi(z, t) = \cos \theta(t) \mathcal{E}_N(z, t) - \sin \theta(t) \sqrt{N} \rho_{13} \quad (2.28)$$

Hierbei ist N die Anzahl der Atome und θ der Mischungswinkel, welcher durch

$$\tan^2 \theta = \alpha_0 c \frac{\gamma_{12}}{\Omega_K^2} = n_{gr} \quad (2.29)$$

definiert ist. Auch hier erkennt man, dass durch Änderung der Kontrollintensität die Mischung zwischen \mathcal{E}_N und ρ_{13} variiert werden kann. Für $\Omega_K \rightarrow 0$ wird das Nachweisfeld komplett in die Kohärenz ρ_{13} transformiert. Mittels des Dunkلزustandspolariton-Ansatzes lässt sich zeigen, dass eine rein räumliche Abnahme der Kontrollintensität entlang der Propagationsrichtung nicht ausreichend zur vollständigen Speicherung des Nachweispulses ist. Die zeitliche Variation der Intensität ist zwingend erforderlich, um störende Absorptionseffekte bei der Propagation des Nachweispulses zu vermeiden [10, 88].

2.3.3 Pulspropagation

Die klassische Beschreibung der Wechselwirkung von Licht und Materie beruht auf den Maxwell'schen Gleichungen. Aus diesen lässt sich die Maxwell'sche Wellengleichung herleiten, welche die Propagation eines Lichtfeldes mit transversaler Komponente \mathcal{E} in nicht magnetischer Materie beschreibt:

$$\left[\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \mathcal{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{P}(\vec{r}, t) \quad (2.30)$$

Hierbei ist $\mathcal{P} = \varrho \langle \hat{\mu} \rangle$ die Polarisation des Mediums, d.h. die makroskopische Dichte der atomaren Dipole. Im Folgenden wird der Fall linearer Polarisation und Ausbreitung in z Richtung betrachtet. Gleichung (2.30) kann erheblich vereinfacht werden, wenn die zeitliche Einhüllende $\mathcal{F} \in \{\mathcal{E}^0, \mathcal{P}^0\}$ langsam gegenüber der schnell oszillierenden Trägerfrequenz ($\sim e^{i(\omega t - kz)}$) variiert:

$$\left| \frac{\partial^2 \mathcal{F}}{\partial z^2} \right| \ll k \left| \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial z} \right| \ll k^2 |\mathcal{F}|, \quad \left| \frac{\partial^2 \mathcal{F}}{\partial t^2} \right| \ll \omega \left| \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial t} \right| \ll \omega^2 |\mathcal{F}| \quad (2.31)$$

Diese Annahme ist für ausreichend lange optische Pulse gerechtfertigt. Vernachlässigt man die Ableitungen zweiter Ordnung, ergibt sich aus (2.30):

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] \mathcal{E}^0(z, t) = i \frac{k}{2\epsilon_0} \mathcal{P}^0(z, t) \quad (2.32)$$

Die komplexen Amplituden \mathcal{P} können durch $\mathcal{P}(z, t) \rightarrow \tilde{\mathcal{P}}(z, t)e^{i\varphi(z, t)}$ in eine reelle Amplitude $\tilde{\mathcal{E}}^0$ bzw. eine komplexe Amplitude $\tilde{\mathcal{P}}^0$ und einen Phasenterm separiert werden. Geht man von der statischen Beobachtung in ein mitbewegtes Zeitfenster ($\tau = t - \frac{z}{c}$, $\xi = z$) über und verwendet $\tilde{\mathcal{P}}_{ij}^0 = 2\rho\mu_{ij}\rho_{ij}$, so folgt:

$$\frac{\partial}{\partial \xi} \tilde{\mathcal{E}}_{ij}^0(\xi, \tau) = -\frac{\rho k \mu_{ij}}{\epsilon_0} \text{Im}[\rho_{ij}(\xi, \tau)] \quad (2.33)$$

$$\frac{\partial}{\partial \xi} \varphi_{ij}(\xi, \tau) = \frac{\rho k \mu_{ij}}{\epsilon_0} \frac{1}{\tilde{\mathcal{E}}_{ij}^0(\xi, \tau)} \text{Re}[\rho_{ij}(\xi, \tau)] \quad (2.34)$$

Anhand dieser einfachen, linearen Differentialgleichungen kann die Rückkopplung einer Kohärenz ρ_{ij} des Übergangs $|i\rangle \leftrightarrow |j\rangle$ auf den Pulsverlauf $\tilde{\mathcal{E}}_{ij}^0$ und die Phase φ_{ij} eines Lichtfeldes berechnet werden. Hierbei geht die Kohärenz aus der Liouville-von-Neumann-Gleichung (2.16) hervor, welche sich wiederum auf einen vorherigen Pulsverlauf stützt. Die iterative Abfolge von Puls- und Kohärenzberechnung ermöglicht somit die numerische Simulation der Propagation von Lichtpulsen durch ein Medium. Begleitend zu dieser Arbeit wurde von C. Hubrich ein Programmcode implementiert, welcher die Simulation des EIT-getriebenen Lichtspeicherprozesses ermöglicht. Im Folgenden werden einige für EIT und die Lichtspeicherung typische Simulationsergebnisse vorgestellt und diskutiert.

Grundlage für eine erfolgreiche Lichtspeicherung ist die Reduktion der Gruppengeschwindigkeit des Nachweispulses durch die vom Kontrollpuls induzierte EIT. Abbildung 2.4 zeigt das Ergebnis einer auf diese Situation angepassten Propagationsrechnung. Der gaußförmige Nachweispuls (blau) durchläuft das Medium, während er vom intensiveren Kontrollpuls (rot) vollständig umschlossen wird. Durchgezogene Linien stellen die Pulse dar, nachdem sie mit dem Medium gewechselwirkt haben. Zum Vergleich sind gestrichelt auch Pulse ohne Wechselwirkung eingezeichnet. Diese geben die ursprüngliche Pulsform wieder. Die hier verwendeten Pulsparameter können direkt aus Abbildung 2.4 entnommen werden und wurden in Anlehnung an typische experimentelle Werte gewählt (s. auch Kap. 4.2). Weitere relevante Parameter sind die Übergangsmomente $\mu_N = 2,1 \cdot 10^{-32}$ Cm, $\mu_K = 1,7 \cdot 10^{-32}$ Cm, die atomare Dichte $\rho = 3 \cdot 10^{14}$ cm⁻³, die Länge des Mediums $L = 3$ mm, die Lebensdauer des angeregten Zustandes $T_1^* = 164 \mu\text{s}$ und die Kohärenzzeit $T_2 = 500 \mu\text{s}$.

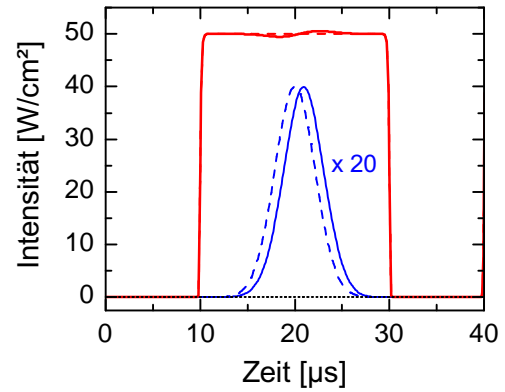


Abbildung 2.4: Simulation der Verlangsamung eines Lichtpulses durch EIT.

Ein Vergleich von ursprünglichem (---) und finalem (—) Nachweispuls zeigt eine deutliche Pulsverzögerung im Bereich von 1 bis $2\mu\text{s}$ aufgrund von EIT. Dies entspricht den im Experiment beobachteten Verzögerungen relativ gut [73] und ergibt Licht-Gruppengeschwindigkeiten im Bereich von lediglich 1500 m/s .

Um den EIT-getriebenen Lichtspeicherprozess zu simulieren, wird die in Kapitel 2.3.2 vorgestellte Sequenz aus Kontroll-Schreibpuls, Kontroll-Lesepuls und Nachweispuls verwendet. Abbildung 2.5 zeigt Ergebnisse entsprechender Propagationsrechnungen. Im oberen Graphen wird ein gaußförmiger Nachweispuls, im unteren Graphen ein nahezu rechteckförmiger (Super-Gauß-Funktion der Ordnung 100) Nachweispuls gespeichert. Im Falle des Gaußpulses erkennt man erneut die Gruppenverzögerung durch EIT. Im Bereich der abfallenden Flanke des Schreibpulses wird der Nachweispuls „abgebaut“ und in die atomare Kohärenz ρ_{13} transformiert. Nach einer Speicherzeit von $\Delta t = 10\mu\text{s}$ wird der Lesepuls eingestrahlt. Die Kohärenz wird in den Signalpuls rücktransformiert. Die Speichereffizienz ist gemäß $\eta = E_{\text{Sig}}/E_N$ über das Verhältnis der Energie von Signal- und Nachweispuls definiert. Diese beträgt im oberen Graphen $\eta_{\text{Gauß}} = 12,9\%$. Bei der Speicherung des rechteckförmigen Nachweispulses (unten) kommt es zwar zu Variationen der initialen Pulsform aufgrund des sprunghaften Intensitätsanstieges und des daher zuerst sehr breiten Spektrums, dennoch wird letztlich eine ähnliche Effizienz von $\eta_{\text{Rechteck}} = 12,4\%$ erreicht. Aufgrund des geringen Effizienzunterschiedes und der einfacheren Implementierung werden in den späteren Experimenten daher meist Nachweispulse mit zeitlich nahezu rechteckförmigem Intensitätsprofil verwendet.

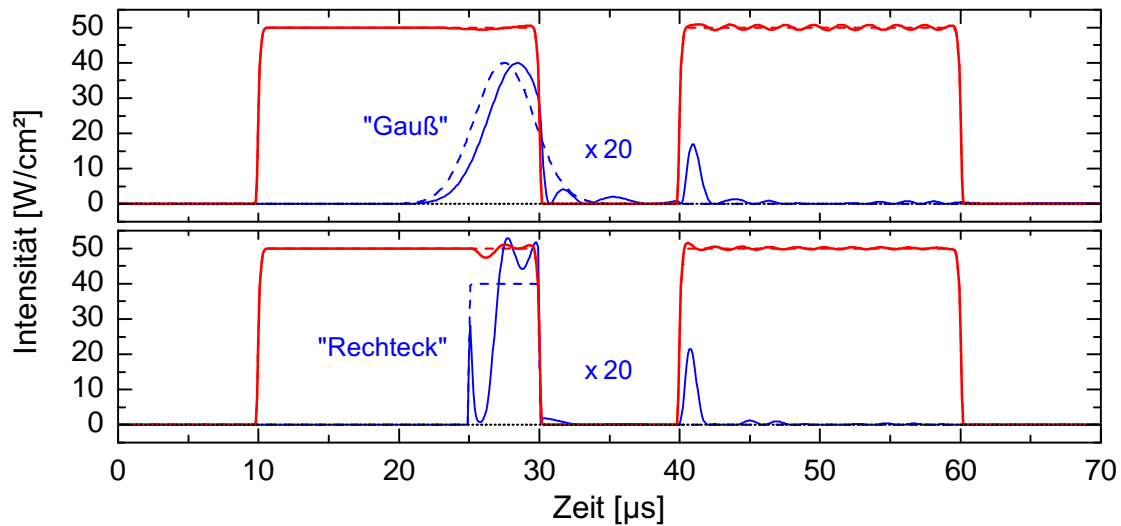


Abbildung 2.5: Simulierte Pulsverläufe vor (gestrichelte Linien) und nach (durchgezogene Linien) der EIT-Lichtspeicherung. Oben: Speicherung eines gaußförmigen Nachweispulses. Unten: Speicherung eines rechteckförmigen Nachweispulses.

Die nicht perfekte Speicherung des Nachweispulses ist auf eine Reihe von Ursachen zurückzuführen. Die moderaten Werte für die optische Dichte $\alpha_0 L$ sowie die vorhandenen Zerfalls- und Dekohärenzraten führen nach (2.29) zur teilweise unvollständigen Transformation zwischen Lichtfeld und Kohärenz. Des Weiteren führen verzögerte Rückkopplungen zu diabatischen Oszillationen der Kohärenz, wel-

che sich wiederum über die Maxwell'schen Gleichung auf die Pulsformen übertragen und die Adiabasie des Speicherprozesses stören [91]. Dieser räumliche Effekt kann nicht durch die einführende Betrachtung eines einzelnen Quantensystemes beschrieben werden. Für eine ausführliche Diskussion der Pulspropagationseffekte in EIT-getriebenen Medien sei auf [91–94] verwiesen.

Mittels der Simulation lassen sich auch Abhängigkeiten der Speichereffizienz von charakteristischen Parametern des Lichtspeicherprozesses untersuchen. Hierzu zählt beispielsweise die Intensität des Nachweispulses I_N . Abbildung 2.6 zeigt exemplarisch eine solche Simulation für die oben angegebenen Parameter. Auffällig ist die vergleichsweise hohe Effizienz bis zu einer Nachweisintensität von $I_N \approx 20 \text{ W/cm}^2$. Ab diesem Wert liegen die Rabi-Frequenzen von Nachweis- und Kontrollpuls in derselben Größenordnung und die für EIT notwendige Bedingung $\Omega_N \ll \Omega_K$ ist nicht mehr gut erfüllt. Bei gleichen Intensitäten ($I_N = I_K = 50 \text{ W/cm}^2$) bricht die Lichtspeicherung vollständig zusammen. Daher werden in den später präsentierten Experimenten typischerweise sehr schwache Nachweispulse eingesetzt. Allerdings zeigt Abbildung 2.6 auch, dass die Nachweisintensität in einem gewissen Bereich variiert werden kann, ohne die Effizienz stark zu vermindern.

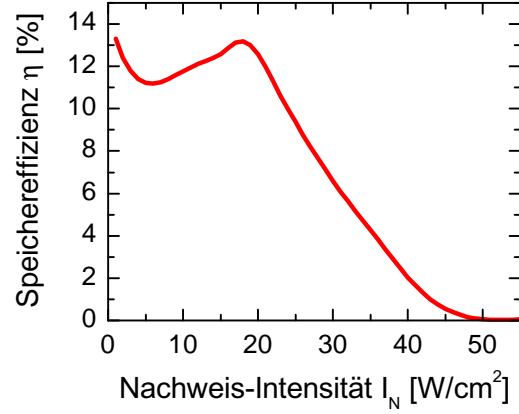


Abbildung 2.6: Simulation der Speichereffizienz gegen die Nachweis-Intensität.

2.3.4 Limitierungen der Speichereffizienz

(a) Optische Dichte

Zur effizienten Speicherung muss die Pulslänge des Nachweispulses im Medium kürzer sein als die Länge L des Mediums selbst. Dies legt die Verwendung von zeitlich kurzen Nachweispulsen nahe. Allerdings muss die Pulsdauer τ_N auch ausreichend lang sein, damit die spektrale Breite des Nachweispulses $\Gamma_N \propto \frac{1}{\tau_N}$ kleiner als die Breite des Transparenzfensters Γ_{EIT} ist. Beide Forderungen lassen sich über die optische Dichte $\alpha_0 L$ des Mediums formulieren [88, 95]:

$$\alpha_0 L \gtrsim \Gamma_{\text{EIT}} \tau_N \gg \sqrt{\alpha_0 L} \quad (2.35)$$

Diese Bedingung kann nur durch hohe optische Dichten $\alpha_0 L$ erfüllt werden.

Darüber hinaus bestimmt die optische Dichte auch die Zahl der zur Lichtspeicherung zur Verfügung stehenden Quantensysteme. Ist diese kleiner als die Anzahl der Nachweisphotonen, so kann lediglich ein Teil des Pulses in die atomare Kohärenz transformiert werden und es kommt zur bereits in Kapitel 2.3.3 diskutierten Deformation der Pulsverläufe. Auch deshalb sind hohe optische Dichten essentiell für eine effiziente Lichtspeicherung mittels EIT. Aus den obigen Gründen erklärt sich das allgemeine Bestreben, experimentell möglichst hohe optische Dichten zu realisieren [96–99].

(b) Zerfall, Dekohärenz und Dephasierung

Da der Nachweispuls in Form einer kohärenten Superposition der Zustände $|1\rangle$ und $|3\rangle$ gespeichert wird, trägt auch die zeitliche Abnahme der präparierten Kohärenz ρ_{13} zur Verringerung der Speichereffizienz bei. Hierfür sind die Effekte des Besetzungszufalls, der Dekohärenz und der Dephasierung verantwortlich, die im Folgenden kurz beschrieben werden.

Der spontane Zerfall der Besetzungen (Γ_{ij}) entsteht im hier genutzten Medium vorwiegend durch nicht vollständig unterdrückte phononische Anregungen und externe Zerfallskanäle. Dies führt nach (2.18) zu Nichtdiagonalelementen des Dissipators \hat{D} und somit zu einem Abbau der präparierten Kohärenz. Unter idealen Bedingungen ist die Lebensdauer T_2 der Kohärenz ρ_{13} durch die doppelte natürliche Lebensdauer von Zustand $|3\rangle$ bestimmt ($T_2 = 2 T_1$).

Des Weiteren trägt nach (2.18) auch die Dekohärenz (γ'_{ij}) zur Reduktion der Speichereffizienz bei. Im Allgemeinen versteht man hierunter stochastische Wechselwirkungen eines relevanten Quantensystems mit dessen Umgebung. Ein einfaches Beispiel hierfür sind atomare Stöße in Gasen. Dadurch werden Phasensprünge induziert, welche im makroskopischen Mittel zu einer Reduktion der Gesamtkohärenz führen. Im hier verwendeten Festkörper ist der wichtigste Dekohärenzmechanismus durch magnetische Spin-Spin-Fluktuationen gegeben (s. Kap. 6.2.2).

Der dritte Prozess, welcher sich negativ auf die detektierte Effizienz auswirkt, ist die Dephasierung präparierter Kohärenzen. Diese tritt in Medien mit inhomogen verbreitetem Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ auf. Die leicht zueinander verschobenen Übergangsfrequenzen bewirken eine unterschiedliche Phasenevolution der präparierten Kohärenzen innerhalb der einzelnen Quantensysteme. Im makroskopischen Mittel kann daher nach einer Dephasierungszeit T_{deph} lediglich ein Bruchteil der anfänglichen Gesamtkohärenz detektiert werden. Aufgrund des kontinuierlichen Charakters der Dephasierung ist dieser Prozess im Gegensatz zum spontanen Zerfall und der stochastischen Dekohärenz jedoch reversibel [100].

(c) Pulsform und Pulspropagation

In Kapitel 2.3.3 wurde bereits kurz auf die Änderung der Nachweispulsform bei der Lichtspeicherung eingegangen. Infolge verzögerter Rückkopplungen ändert sich im Allgemeinen aber auch die Form der Kontrollpulse. Dies verletzt die Adiabasie des Speicherprozesses ebenso [101, 102]. Es werden nicht-adiabatische Korrekturen notwendig [103–105]. Die Folgen sind: Erhöhte diabatische Absorption gefolgt von spontaner Emission, veränderte Propagationsgeschwindigkeiten, Pulsverbreiterung und Deformation [88]. All dies reduziert die Speichereffizienz.

Allerdings gibt es für gegebene experimentelle Parameter auch Pulsverläufe, welche eine besonders geringe Deformationen und eine hohe Speichereffizienz aufweisen. Da die Pulsformen analytisch oft nur unzureichend bestimmt werden können, wurde in der Vergangenheit auf die optimale Kontrolltheorie zurückgegriffen, welche iterative Verfahren nutzt, um bei bekannten Verlusten optimale Lösungen zu finden [106–110]. Die experimentelle Umsetzung dieses Ansatzes führt zur iterativen Pulsformung mittels selbstlernender Algorithmen [111]. In den Arbeiten von *Gorshkov, Novikova, Phillips et al.* konnten mittels dieser Verfahren Speichereffizienzen von über 40 % erreicht werden [107, 112].

(d) Propagationsrichtung der Lichtpulse

Typischerweise werden Schreib- und Nachweispuls so implementiert, dass diese kollinear durch das Medium laufen. Der Betrag der hierbei aufgebauten Grundzustandskohärenz ist aufgrund von Absorption und Propagationseffekten räumlich asymmetrisch. Besitzt der Auslesepuls die gleiche Propagationsrichtung wie der Schreibpuls, verstärken sich die Propagationseffekte für den Signalpuls, da dieser das ganze Medium passiert. Besitzt der Leseimpuls hingegen den zeitlich invertierten Pulsverlauf des Schreibpulses und wird antikollinear eingestrahlt, läuft der Leseprozess invertiert ab. Die Propagationseffekte werden teilweise aufgehoben, der Signalpuls muss nicht das komplette Medium passieren [106]. Mittels des invertierten Auslesens können bei hohen optischen Dichten prinzipiell Effizienzen von bis zu 100 % erreicht werden. Eine ausführliche Diskussion dieser Thematik findet sich in [109, 113]. In den experimentellen Arbeiten von *Chen et al.* konnte die Lichtspeichereffizienz mittels dieser Methode auf 78 % gesteigert werden [99].

(e) Frequenzstabilität

Ein nicht zu vernachlässigender, experimenteller Faktor ist die Stabilität der genutzten Lichtfelder. Finden die Frequenzschwankungen auf langen Zeitskalen im Bereich der Speicherdauer Δt statt, muss beachtet werden, dass beim Schreib- und beim Leseprozess unterschiedliche Einphotonenverstimmungen vorliegen ($\Delta_{N,K}^{(\text{schreib})} \neq \Delta_{N,K}^{(\text{lese})}$). Anhand Abbildung 2.3 erkennt man, dass dies zu einer Verschiebung des Transmissionsfensters führt. Der Ausleseprozess ist somit nicht-resonant und es kommt zur zeitlichen Deformation und inkohärenter Absorption des Signalpulses.

Finden die Fluktuationen auf Zeitskalen unterhalb der Nachweispulsdauer statt ($\tau_{\text{Flukt.}} < \tau_N$), müssen die Zustandsphasen (2.5) bzw. der Hamiltonoperator (2.8) um stochastische Faktoren erweitert werden [114]. Dieser Effekt lässt sich als zusätzliche Dekohärenz während des Schreib- bzw. Leseprozesses interpretieren, welche sich wiederum negativ auf die Gesamteffizienz auswirkt.

(f) Transversale Mittelungseffekte

Für gegebene experimentelle Parameter $\alpha_0 L$, Ω_N und τ_N gibt es eine für die Lichtspeicherung optimale Rabi-Frequenz $\Omega_K^{(\text{opt})}$. Ist die Intensität des Kontrollfeldes sehr hoch ($\Omega_K \gg \Omega_K^{(\text{opt})}$), wird der Nachweispuls nur unzureichend im Medium komprimiert. Ist die Intensität des Kontrollfeldes sehr niedrig ($\Omega_K \ll \Omega_K^{(\text{opt})}$), wird die Breite des Transparenzfensters Γ_{EIT} gemäß (2.24) kleiner als die spektrale Breite des Nachweispulses. Beides führt zu einer reduzierten Speichereffizienz.

Das räumliche Intensitätsprofil der Laserpulse ist im Allgemeinen nicht homogen, sondern weist meist eine transversale Variation $\Omega(x, y)$ (z.B. Gaußprofil) auf. Wählt man die Intensitäten derart, dass $\Omega_K(x = 0, y = 0) = \Omega_K^{(\text{opt})}$ kann zwar im Zentrum eine hohe Speichereffizienz erreicht werden, an den Flanken nimmt diese aber ab. Der Effekt lässt sich durch größere Strahldurchmesser ($\varnothing_K \gg \varnothing_N$) bzw. Verwendung von räumlichen Rechteck-Profilen minimieren – aber kaum vollständig vermeiden.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, die EIT-getriebene Speicherung von Lichtpulsen in einem seltenerd-dotierten Festkörper zu implementieren. Dabei sollen eine hohe Speicherkapazität sowie lange Speicherzeiten erzielt werden.

Das im Rahmen dieser Arbeit genutzte Speichermedium ist ein $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ -Kristall. Bei kryogenen Temperaturen weisen die dotierten Pr^{3+} -Ionen einen spektral scharfen optischen Übergang zwischen dem elektronischen Grundzustand 3H_4 und dem angeregten Zustand 1D_2 auf (s. Kap. 1.3.1). Dieser kann mit Strahlung der Wellenlänge 605,98 nm getrieben werden. Da die Zustände 3H_4 und 1D_2 zudem eine HFS aufweisen (s. Kap. 1.3.2), können durch verstimmte Laserstrahlen mehrere Niveaus adressiert werden. Hierdurch kann das für EIT benötigte Λ -System in der inhomogenen Mannigfaltigkeit präpariert werden. Zur Lichtspeicherung müssen Nachweis- und Kontrollpulse erzeugt werden, welche unabhängig voneinander in Intensität und Frequenz kontrolliert werden können. Die Erzeugung der optischen Strahlung sowie die hier genutzte Technik zur Pulsformung und die Strahlführung werden in Kapitel 3.2 vorgestellt. Zuvor wird jedoch in Kapitel 3.1 kurz auf die Erzeugung der kryogenen Temperaturen eingegangen.

Die Erhöhung der Speicherkapazität soll in den hier präsentierten Experimenten unter anderem durch die Speicherung von Bildern statt transversal unmodulierter Intensitätsverteilungen erfolgen. Hierzu müssen den Nachweisstrahlen optische Muster aufgeprägt werden. Dies geschieht im Experiment mittels teiltransparenter optischer Masken. Da sich die Abbildungsqualität der Muster in den Kristall und auf den Detektor entscheidend auf die Speicherkapazität auswirkt, wurden im Rahmen dieser Arbeit zwei Abbildungssysteme untersucht. Diese werden detailliert in Kapitel 3.3 diskutiert. Die Detektion und die Verarbeitung der ausgelesenen Signale wird kurz in Kapitel 3.4 besprochen.

Um die Speicherzeit in den EIT-getriebenen Lichtspeicherexperimenten zu erhöhen, sollen störende Einflüsse mittels externer Magnetfelder minimiert werden. Statische Felder sollen dazu eingesetzt werden, die HFS so aufzuspalten, dass bestimmte Übergänge insensitiver gegenüber externen Magnetfeldfluktuationen werden. Zusätzlich sollen die Pr^{3+} -Ionen durch Magnetfeldpulse im Hochfrequenz (HF)-Bereich von den Fluktuationen entkoppelt werden. Zur Erzeugung der statischen sowie der HF-Magnetfelder wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Spulensystem entwickelt, welches sich innerhalb des Kryostaten befindet und die Manipulation von Dekohärenzeffekten ermöglicht. Dieser zentrale Teil des experimentellen Aufbaus wird in Kapitel 3.5 vorgestellt.

Der gesamte experimentelle Aufbau ist schematisch in Abbildung 3.1 gezeigt.

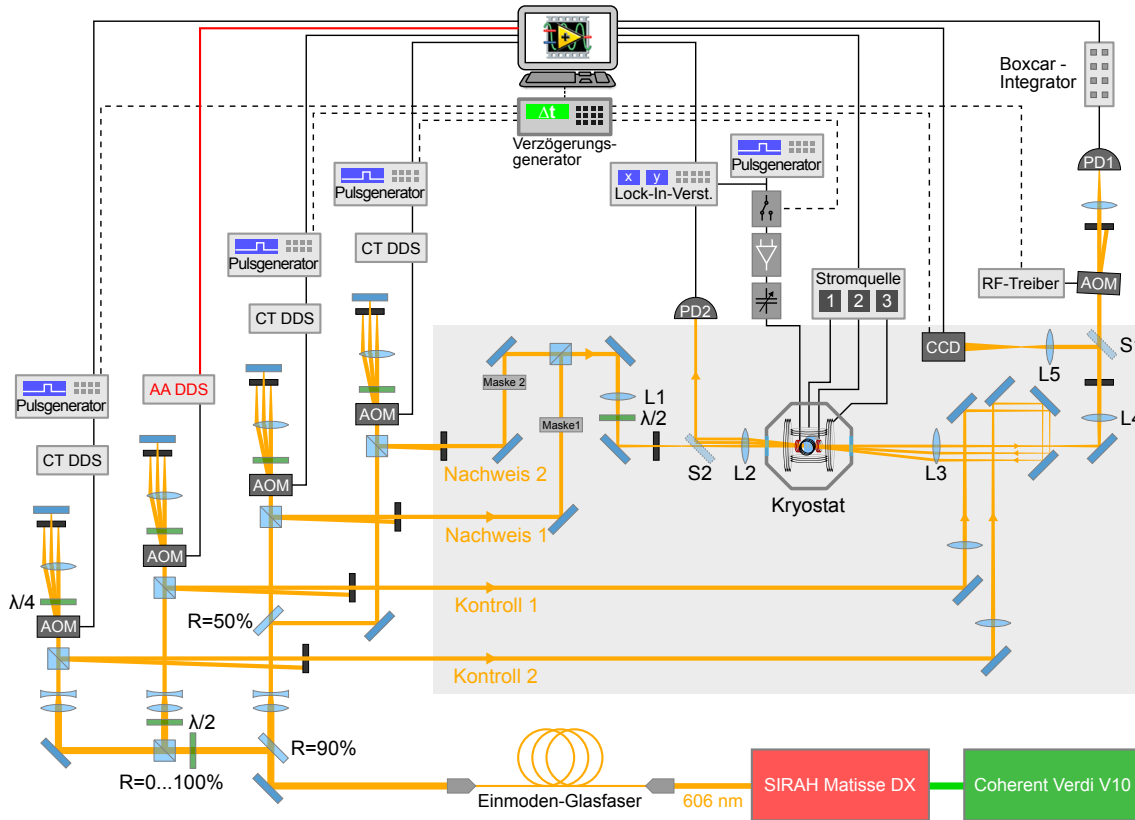


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau des Experiments. Die Laserstrahlung (—) wird auf die Strahlengänge „Kontroll 1“, „Kontroll 2“, „Nachweis 1“ und „Nachweis 2“ aufgeteilt. Schwarze durchgezogene Linien (—) symbolisieren elektronische Signale. Schwarze gestrichelte Linien (---) repräsentieren vom Verzögerungsgenerator ausgehende TTL-Signale. Das in Kapitel 3.3 näher betrachtete Abbildungssystem ist grau hinterlegt.

3.1 Erzeugung kryogener Temperaturen

Der $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ Kristall (Scientific Materials, Maße: $5 \times 5 \times 3$ mm) befindet sich im Zentrum eines Helium-Durchfluss-Kryostaten (Janis ST-100 Optical Cryostat). Mit diesem kann der Kristall auf Temperaturen von unter 3 K gekühlt werden, so dass phononische Anregungen im Idealfall unterdrückt sind (s. Kap. 1.3.1). Die Kühlleistung in diesem Temperaturbereich ist mit ca. 3 W mehr als zehnmal so hoch wie die eines zunächst im Experiment verwendeten Kryostaten mit geschlossenem Helium-Kreislauf (Janis SHI-4-1-331S). Eine hohe Kühlleistung ist für den stabilen Betrieb eines Systems mit parasitären Wärmequellen (z.B. durch elektrische Zuleitungen) unerlässlich. Mittels des Durchflusskryostaten konnten außerdem zeitliche Schwankungen der Temperatur von $\Delta T \approx 500$ mK auf ca. 50 mK reduziert werden. Ebenso sind mechanische Vibrationen im Durchflusskryostaten gegenüber einem Kryostaten mit Helium-Umlauf und angeschlossener Pumpe stark reduziert. Die maximale Translation des Kristalls liegt unterhalb eines Mikrometers [115].

Neben der Kühlung des Kristalls ist der Kryostat auch für die Kühlung des Spulensystems zur Erzeugung der statischen und hochfrequenten Magnetfelder verantwortlich. Details hierzu sind in Kapitel 3.5 zu finden.

3.2 Strahlerzeugung und Pulsformung

Die optische Strahlung wird durch einen durchstimmbaren Dauerstrich-Farbstofflaser (SIRAH Matisse DX, Farbstoff: Rhodamin 6G) bereitgestellt, welcher von einem diodengepumpten Festkörperlaser (Coherent Verdi V10) gepumpt wird. Bei einer Pumpleistung von ca. 7 W wird bei $\lambda = 605,98 \text{ nm}$ eine Ausgangsleistung von ca. 1 W erreicht. Frequenzfluktuationen werden mittels einer integrierten Stabilisierung auf einen Referenzresonator nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren minimiert [116]. Die spezifizierte Frequenzbandbreite auf einer Zeitskala von 100 ms beträgt $\Delta\nu_{\text{Flukt.}} \simeq 100 \text{ kHz}$. Die Strahlung wird durch eine Einmodenglasfaser zum optischen Aufbau geleitet. Bei Ein- und Auskopplung sowie durch Streuung innerhalb der Faser treten Verluste auf, so dass am Experiment Leistungen im Bereich von 400 bis 600 mW zur Verfügung stehen.

Die ausgekoppelte Strahlung wird durch Strahlteiler in vier Strahlwege aufgespalten. Jeweils 5 % der Gesamtleistung entfallen auf die Strahlwege Nachweis 1 und Nachweis 2, welche unter anderem zur Absorptionsspektroskopie verwendet werden. Die restlichen 90 % können durch eine Kombination von Polarisationsstrahlteilerwürfel und Verzögerungsplatten variabel auf die Strahlwege Kontroll 1 und Kontroll 2 aufgeteilt werden.

Um aus der kontinuierlichen Strahlung die benötigten Laserpulse zu generieren, durchlaufen alle Strahlen akusto-optische Modulatoren (AOM). Die hier genutzten AOM (Brimrose BRI-VFF-80-50-V-B1-F1) besitzen eine Zentralfrequenz von 80 MHz und erlauben eine Frequenzvariation um $\pm 25 \text{ MHz}$. Die Hochfrequenzsignale für die AOM werden von HF-Treibern generiert, welche auf dem Prinzip der direkten digitalen Synthese (DDS) basieren. Hierdurch kann eine hohe Auflösung ($\simeq 1 \text{ Hz}$) und Stabilität ($< \pm 2 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$) der erzeugten HF-Welle erreicht werden. Die AOM im Strahlengang Nachweis 1, Nachweis 2 und Kontroll 2 werden mit DDS-Treibern der Firma Crystal Technology (AODS 20160-1) betrieben. Die Frequenzinformation wird hier digital übergeben, die Amplitude der HF-Welle wird durch Pulsgeneratoren (Agilent 33220A) analog gesteuert. Aufgrund der langsamen Datentransferrate werden diese Treiber vorwiegend für einfache Pulsverläufe konstanter Frequenz eingesetzt.

Eine Sonderstellung nimmt der DDS-Treiber für den AOM im Strahlengang Kontroll 1 ein. Da die Pulsverläufe in diesem Strahlengang wesentlich komplexer sind und in kurzen Zeitabständen geändert werden müssen (s. Kap. 7.2), kommt ein DDS-Treiber der Firma AA Opto-Electronic (DDSPA-B8b23b-0) zum Einsatz. Dieser wird mit einer Taktrate von bis zu 10 MHz über 32 TTL-Kanäle einer Wandlerkarte (NI-PCIe-6535) ausschließlich digital angesteuert und erlaubt schnelle Variationen von Frequenz und Amplitude [117].

Die AOM werden in Doppel-Pass-Konfiguration [118] betrieben. Hierbei wird die erste Beugungsordnung mittels einer Iris-Blende selektiert und durch einen Retroreflektor zurückgeworfen. Der Strahl wird erneut im AOM gebeugt und verläuft anschließend antikollinear zur anfänglichen Ausbreitungsrichtung. Der zweifach gebeugte Strahl wird durch eine Kombination von $\lambda/4$ -Platte und Strahlteilerwürfel separiert. Dieser Aufbau ermöglicht eine Verdopplung des Verstimmbereichs auf $160 \pm 50 \text{ MHz}$, sowie eine räumlich stabile Lage des Ausgangsstrahls.

Die Nachweisstrahlen durchlaufen anschließend jeweils ein Abbildungssystem, welches bei Bedarf das Bild einer binären Maske an den Ort des Kristalls projiziert (s. Kap. 3.3). Die Kontrollstrahlen werden um den Kristall herumgeleitet und unter kleinen Winkeln zu den Nachweisstrahlen ($\alpha_1 \approx 1,5^\circ$, $\alpha_2 \approx 2,7^\circ$) im Kristallzentrum zum Überlapp gebracht. Um maximale Wechselwirkung zwischen den Laserfeldern und den Pr^{3+} -Ionen zu gewährleisten, ist die Polarisationsrichtung senkrecht zur C_2 -Achse des Kristalls ausgerichtet. Eine geringe Abweichung kann für die Nachweisstrahlen mittels einer $\lambda/2$ -Platte vor dem Kryostaten korrigiert werden.

3.3 Das optische Abbildungssystem

Ein zentrales Ziel dieser Arbeit ist die Speicherung räumlich inhomogener, zweidimensionaler Lichtverteilungen mittels EIT in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Das transversale Profil der Lichtverteilungen ist im Gegensatz zu Pulsen mit z.B. gaußförmigem Strahlprofil moduliert, und kann daher zusätzliche Information tragen. In diesem Fall wird daher im Folgenden meist von „Bildspeicherung“ gesprochen.

Die Bildinformation wird den Nachweispulsen durch je eine teiltransparente Maske (USAF 1951 Resolution Target) aufgeprägt. Hierbei handelt es sich um eine typische Testmaske aus dem Bereich der angewandten Optik. Abbildung 3.2 zeigt eine Durchlichtaufnahme von Maske 1. Auf der Maske befinden sich mehrere Strukturen spezifizierter Größe. Sie werden unterteilt in Gruppen mit jeweils sechs Elementen, deren Größe mit zunehmender Elementnummer abnimmt.

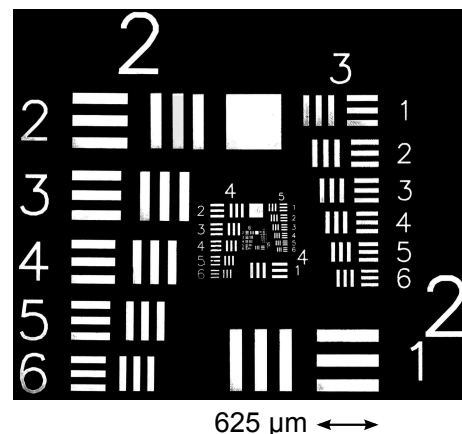


Abbildung 3.2: Durchlichtaufnahme der Maske 1.

Um die Nachweisstrahlen auf die Strukturgrößen anzupassen, das aufmodulierte Bild in das Kristallzentrum abzubilden und dieses anschließend zu detektieren, durchlaufen die Strahlen ein Abbildungssystem. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Abbildungsarten untersucht. Der endgültige Aufbau der reellen Abbildung ist in Abbildung 3.1 grau hinterlegt und wird in Kapitel 3.3.2 diskutiert. Zuvor wird jedoch auf die Fourier-Abbildung eingegangen, mit welcher erstmals die Bildspeicherung demonstriert werden konnte (s. auch Kap. 5.1.1).

3.3.1 Abbildung eines Beugungsbildes in den Kristall

In einem ersten Aufbau wurde anstatt des in Abbildung 3.1 grau hinterlegten Abbildungssystem eine einfachere Konfiguration – die Fourier-Abbildung – getestet (s. Abb. 3.3). Hierbei werden lediglich die Strahlengänge Nachweis 1 und Kontroll 1 verwendet. Der Unterschied zum später genutzten System der reellen Abbildung ist die Verwendung von lediglich zwei Linsen L2 und L3 in deren gemein-

samer Brennpunkt der Kristall platziert ist. Weisen die Linsen identische Brennweiten f auf, spricht man aufgrund der Gesamtlänge des Abbildungssystems auch von einem $4f$ -System [119]. Die Maske befindet sich in der vorderen Brennebene der ersten Linse L2 (Objektebene). Die aufgeprägte Lichtverteilung der Feldstärke $E(x, y)$ wird durch die Linse L2 in den Fourier-Raum transformiert und ergibt sich in der gemeinsamen Brennebene – der Fourierebene – aus dem Fraunhoferschen Beugungsintegral:

$$E(x', y') = \mathcal{F}[E(x, y)] = A \cdot \iint E(x, y) e^{-i 2\pi (v_x x + v_y y)} dx dy \quad (3.1)$$

Hierbei ist A ein phasenbehafteter Faktor mit $|A| = 1$, welcher bei der Betrachtung der relativen Intensität $I(x', y') \propto |E(x', y')|^2$ keine Rolle spielt. Die Raumfrequenzen $v_x = x' / (\lambda f)$ und $v_y = y' / (\lambda f)$ charakterisieren die Auflösung des Objektes. Objekte mit kleiner Strukturgröße d führen laut Gittergleichung $\sin \alpha = \frac{m\lambda}{d}$ zu großen Beugungswinkeln α . Aus $\alpha \approx \tan \alpha = \frac{x'}{2f} = \frac{v_x \lambda}{2}$ ergibt sich somit, dass kleine Objekte mit hohen Raumfrequenzen, d.h. räumlich ausgedehnten Fourierbildern, verknüpft sind.

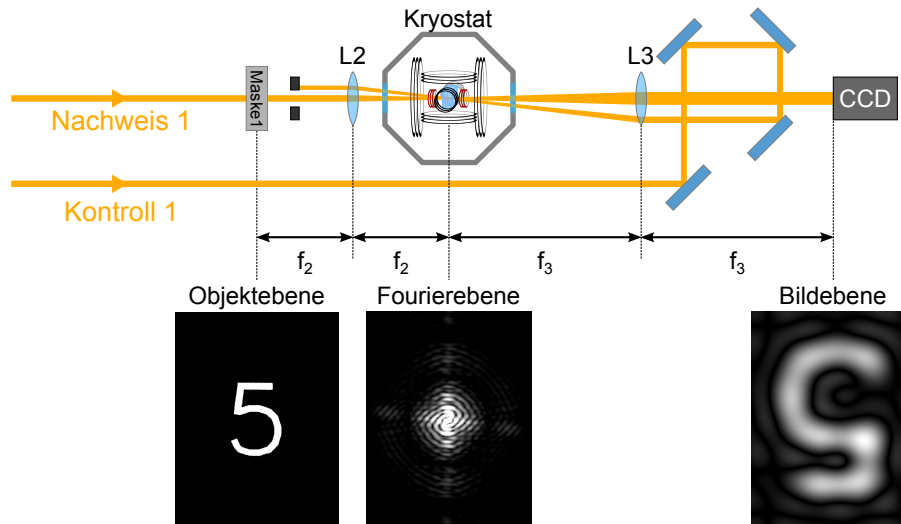


Abbildung 3.3: Schematischer Aufbau der Fourier-Abbildung. Die Linse L2 bildet das Objekt (die Zahl „5“) als Fourierbild in den Kristall ab. Dieses wird durch die Linse L3 in die Bildebene rücktransformiert, in welcher die CCD-Kamera positioniert ist. Die in der unteren Reihe gezeigten Bilder sind Simulationen der entsprechenden Lichtverteilungen.

Die Rücktransformation des Fourierbildes in den Ortsraum erfolgt durch die zweite Linse L3. Die Intensitätsverteilung in der Bildebene entspricht somit einer zweifachen Fouriertransformation der Intensitätsverteilung in der Objektebene. Bei identischen Brennweiten f ergibt sich eine invertierte 1:1 Abbildung. Werden hingegen, wie im hier genutzten Aufbau, Linsen unterschiedlicher Brennweiten verwendet (hier: $f_2 = 75$ mm, $f_3 = 150$ mm) so ändert sich die Bildgröße entsprechend:

$$I(x'', y'') \propto \left| \mathcal{F}^{(L3)} \left[\mathcal{F}^{(L2)} [E(x, y)] \right] \right|^2 \propto I\left(-\frac{f_2}{f_3} x, -\frac{f_2}{f_3} y\right) \quad (3.2)$$

Die hier vorgestellten $4f$ -Systeme finden breite Anwendung in vielen optischen Abbildungssystemen. Ein solcher Aufbau wurde auch genutzt, um erstmals die Verlangsamung und Speicherung von Bildern in EIT-getriebenen Medien zu demonstrieren [25, 27]. Für gasförmige Medien erweist sich dabei die Speicherung der Fourierkomponenten als vorteilhaft. Im Vergleich zur Speicherung räumlich lokalisierter Information ist das Fourierbild unempfindlicher gegenüber atomaren Diffusionsprozessen [27].

Auflösungsvermögen

Um die bei der Bildspeicherung erreichbare Speicherkapazität abschätzen zu können, ist das Auflösungsvermögen des optischen Abbildungssystems relevant. Dieses kann mittels der Abbeschen Abbildungstheorie bestimmt werden.

Um eine minimale Strukturgröße d_{min} noch eindeutig auflösen zu können, müssen mindestens die nullte und eine der ersten Beugungsordnungen ($m = +1$ oder $m = -1$) abgebildet werden. Folglich müssen diese innerhalb der numerischen Apertur $NA = n \cdot \sin \alpha$ des optischen Systems liegen. Hierbei ist α der halbe Akzeptanzwinkel des Systems und n der Brechungsindex. Aus der Gittergleichung (s.o.) ergibt sich somit das Abbesche Auflösungskriterium:

$$d_{min} = \frac{\lambda}{n \cdot \sin \alpha} \quad (3.3)$$

Mit der Annahme, dass das Auflösungsvermögen durch die nutzbare Apertur D der Linse L2 bestimmt wird, ergibt sich wegen $\alpha = \arctan(D/2f_2)$ eine minimal auflösbare Strukturgröße von $3,9 \mu\text{m}$. Hierbei wurde $n \approx 1$ für Luft und $D = 23,8 \text{ mm}$ für die verwendeten Optiken mit Durchmessern von einem Zoll angenommen. Dieses Auflösungsvermögen wird im realen Experiment allerdings nicht erreicht. Grund hierfür ist die Reduktion der nutzbaren Apertur durch die Öffnungen des Strahlungsschildes innerhalb des Kryostaten ($D \approx 1 \text{ cm}$) bzw. den Durchmesser der Hochfrequenzspulen ($D = 5 \text{ mm}$) (s. Kap. 3.5.3). Am kritischsten wirkt sich jedoch die Begrenzung des Speichergebietes innerhalb des Kristalls durch den Strahldurchmesser des Kontrollstrahls von ca. $300 \mu\text{m}$ aus. Es werden nur noch verhältnismäßig kleine Raumfrequenzen im Zentrum des Kristalls gespeichert, so dass aufgrund der Raumfilterung die Konturen des Bildes weiter „ausgewaschen“ werden. Mit einer effektiven Apertur von $D_{eff} = 300 \mu\text{m}$ ergibt sich aus (3.3) eine erwartete Auflösungsgrenze von $d_{min} = 303 \mu\text{m}$.

3.3.2 Abbildung eines reellen Bildes in den Kristall

Die Speicherkapazität kann deutlich erhöht werden, wenn statt des räumlich ausgedehnten Fraunhofer-Beugungsbildes eine reelle, d.h. räumlich beschränkte Abbildung des Objekts im Kristall gespeichert wird. Hierzu wird die Fourier-Abbildung um zwei Linsen L1 ($f_1 = 200 \text{ mm}$) und L4 ($f_4 = 150 \text{ mm}$) erweitert, welche zusammen mit den Linsen L2 und L3 jeweils ein $4f$ -System bilden (s. Abb. 3.4).

Bei diesem System werden alle Strahlengänge genutzt. Maske 1 sowie Maske 2 werden im entsprechenden Nachweisstrahlengang in der vorderen Brennebene von Linse L1 platziert. Die Nachweisstrahlen werden durch einen nichtpolarisierenden Strahlteilerwürfel überlagert, so dass sie anschließend kollinear durch den Kristall propagieren. Das erste $4f$ -System aus Linse L1 und L2 wirkt hierbei als Teleskop und projiziert die aufgeprägten Bilder mit einem Verkleinerungsfaktor von $f_2/f_1 = 0,375$ als reelles Bild in den Kristall. Bei anfänglichen Strahldurchmessern im Bereich von $\varnothing_{in} = 450...600\mu m$ (Volle Breite bei halbem Maximum der Intensität (FWHM)) liegt der Strahldurchmesser am Ort des Kristalls daher typischerweise in der Größenordnung von $\varnothing_N \approx 200\mu m$. Die Nachweisstrahlen werden im Kristall vollständig von den Kontrollstrahlen umschlossen, welche dort einen typischen Durchmesser von ca. $\varnothing_K \approx 300\mu m$ aufweisen. Eine Raumfilterung aufgrund des durch die Kontrollstrahlen beschränkten Speichergebietes findet somit nicht statt.

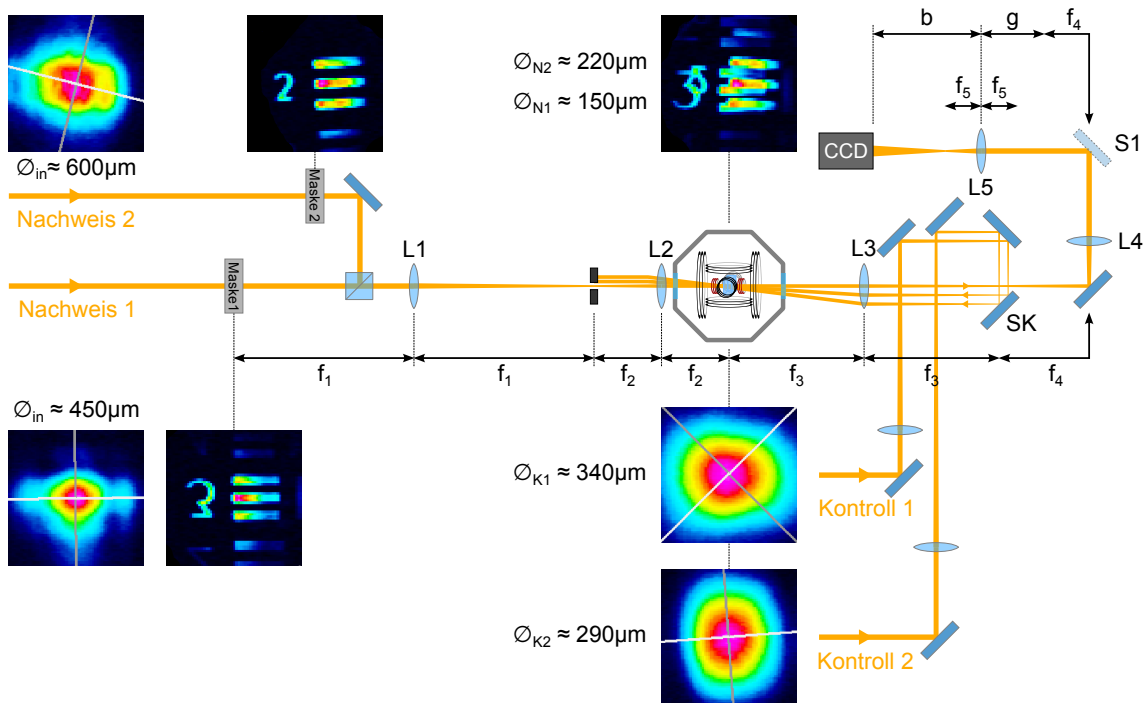


Abbildung 3.4: Schematischer Aufbau der reellen Abbildung. Das erste Teleskop (L1 & L2) projiziert die Objekte (hier die Zahlen „2“ und „3“ sowie ein horizontales Streifenmuster) als reelle Abbilder in den Kristall. Das zweite Teleskop (L3 & L4) bildet diese mit der Linse L5 auf die CCD-Kamera ab. Die Falschfarbenbilder geben die anfänglichen Strahlprofile wieder und wurden bei kontinuierlicher Beleuchtung aufgenommen.

Das zweite $4f$ -System aus den Linsen L3 und L4 bildet zusammen mit der Vergrößerungslinse L5 das reelle Bild am Ort des Kristalls auf die CCD-Kamera ab. Die identischen Brennweiten von L3 und L4 ($f_3 = f_4 = 150\text{ mm}$) sorgen hierbei für eine 1:1 Abbildung. Die Linse L5 ($f_5 = 50\text{ mm}$) bestimmt nach der Linsengleichung $1/f_5 = 1/g + 1/b$ den Abbildungsmaßstab. Abhängig von der Gegenstandsweite g werden die Bilder typischerweise um einen Faktor ~ 5 vergrößert auf die Kamera projiziert.

Auflösungsvermögen

Die minimal auflösbare Strukturgröße wird im Aufbau der reellen Abbildung nicht mehr durch das limitierte Speichergebiet beschränkt. Begrenzend wirken jetzt lediglich die weiteren Aperturen im Strahlengang. In horizontaler Richtung schneidet der Spiegel SK höhere Fourierkomponenten rechtsseitig des Nachweisstrahls ab. In vertikaler Richtung ist der Durchmesser der Linse L3 die limitierende Apertur. Die unterschiedlichen Geometrien wirken sich allerdings nicht stark auf das erreichbare Auflösungsvermögen aus, so dass im Folgenden aus Gründen der Übersichtlichkeit lediglich auf das durch L3 begrenzte Auflösungsvermögen eingegangen wird. Für eine detailliertere Betrachtung sei auf [120] verwiesen.

Die für die erste Linse effektiv nutzbare Apertur ergibt sich aus $D_{eff} = f_2/f_3 D_{L3}$ mit $D_{L3} = 23,8 \text{ mm}$. Das Abbesche Auflösungskriterium (3.3) liefert somit eine minimale Strukturgröße von $d_{min} = 20,4 \mu\text{m}$. Das Auflösungsvermögen der reellen Abbildung ist folglich um über eine Größenordnung höher als das der Fourier-Abbildung. Ein Vergleich der experimentell ermittelten Auflösungsvermögen beider Abbildungssysteme ist in Kapitel 5 zu finden.

3.4 Detektion und Steuerung

Um die Nachweis- und Signalpulse zu detektieren, wird die Photodiode PD1 (New Focus 2051) mit integrierter Verstärkung und Rauschfilterung verwendet. Deren elektronisches Signal wird durch einen Boxcar-Integrator (SRS SR 250) integriert und durch eine A/D-Wandlerkarte (NI PCIe 6363) erfasst. Dabei kann der Nachweiszeitraum durch einen vorgeschalteten AOM (NEOS 23080-1) kontrolliert werden. Im Falle der Bildspeicherung (s. Kap. 5.1) erfolgt die Detektion mit einer CCD-Kamera (Prosilica GC1290). Der Detektionszeitraum wird bei der Kamera durch die Belichtungszeit ($\tau_{Bel.} = 12 \mu\text{s} \dots 60 \text{ s}$) und den Triggerzeitpunkt bestimmt.

Neben den Nachweisstrahlen können auch die Pulse aus Strahlengang Kontroll 1 nach dem Kristall detektiert werden. Hierzu wird der Spiegel S2 in den Strahlengang eingebracht und die Photodiode PD2 (Thorlabs PDA155-EC) verwendet. Diese Detektionsvariante wird vor allem für schnell modulierte optische Signale verwendet (s. Kap. 6). Die Aufnahme dieser Signale geschieht durch einen Lock-In-Verstärker (ZI HF2LI).

Die zentrale Steuerung des Experiments übernimmt der Messrechner. Mittels des Programmpaketes *LabView* werden alle Pulsverläufe erstellt und an die entsprechenden Treiber bzw. Funktionsgeneratoren übergeben. Ebenso kontrolliert der Rechner die zeitliche Synchronisation der Pulse über einen Verzögerungsgenerator (SRS DG535). Der überwiegende Teil der Datenaufnahme und Auswertung geschieht vollautomatisiert durch den Messrechner.

3.5 Magnetfeldaufbau

Ein weiteres Ziel dieser Arbeit ist die direkte Manipulation der Hyperfeinzustände der Pr^{3+} -Ionen durch hochfrequente und statische Magnetfelder (s. Kap. 1.3.2).

Hierzu wurde ein kompaktes Spulensystem entwickelt, welches sich innerhalb des Kryostaten befindet. Die Anforderungen an das Gesamtsystem sind vielschichtig: Das statische Magnetfeld soll in beliebiger Raumrichtung mit einer Feldstärke von bis zu $B_{max} \approx 2000\text{ G}$ angelegt werden können. Dabei ist eine hohe Homogenität, sowie eine minimale zeitliche und räumliche Schwankung der Feldstärke für die hier angedachten Experimente essentiell. Das hochfrequente Magnetfeld soll kollinear zur Strahlachse erzeugt werden und stark genug sein, um Hyperfeinübergänge innerhalb eines elektronischen Zustandes „hart“ zu treiben ($\Omega_{HF} \gg \Gamma_{inhom}^{HFS}$) (s. Kap. 1.4). Dabei ist eine minimale Beeinflussung des statischen Feldes wünschenswert. Da alle Experimente bei kryogenen Temperaturen stattfinden, muss außerdem darauf geachtet werden, dass es zu keiner Temperaturerhöhung durch induzierte Wechselströme, Ohmsche Verluste oder Wärmeleitung kommt. Darüber hinaus soll das Gesamtsystem modular aufgebaut sein und muss einen ausreichenden optischen Zugang zum Kristall bieten.

3.5.1 Aufbau im Kryostaten

Einen Überblick über das Kryostateninnere geben Abbildungen 3.5 und 3.6, die ein Foto bzw. eine Explosionszeichnung des hier aufgebauten Spulensystems zeigen. Im Zentrum des Systems befindet sich der $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ -Kristall, der in einem keilförmigen Probenhalter (a) montiert ist. Dieser wird mittels einer Deckplatte (e) in den Systemträger (b) gepresst. Der Systemträger ist mit dem Kältefinger (c) des Kryostaten verbunden, an welchem ebenfalls ein Temperatursensor kontaktiert ist. Innerhalb des Kältefingers verdampft das flüssige Helium und entzieht dem Gesamtsystem Wärme. Ein Strahlungsschild, welches das montierte Gesamtsystem umschließt und vor äußerer Wärmestrahlung schützt, ist nicht abgebildet.

Aufgrund der zur Verfügung stehenden kryogenen Temperaturen und der geforderten hohen Magnetfelder sind die Spulen zur Erzeugung des statischen Feldes in supraleitender Bauweise erstellt (s. Kap. 3.5.2). Dies ermöglicht eine kompakte Geometrie, so dass das System mit moderaten Strömen ($I \lesssim 10\text{ A}$) betrieben werden kann. Um ein homogenes Feld in beliebiger Raumrichtung zu generieren, sind die supraleitenden Spulen als zueinander orthogonal stehende Helmholtz-Spulenpaare (1),(2),(3) konzipiert. Der thermische Kontakt zum Systemträger wird dabei durch die zwei Spannbaken (d) hergestellt. Da eine gute Wärmeleitung zwischen Kältefinger und supraleitenden Spulen essentiell ist, wurden alle relevanten Bauteile aus sauerstofffreiem Kupfer gefertigt, welches zum Schutz vor Oxidation mit einer $0,2\mu\text{m}$ dicken Goldschicht überzogen wurde.

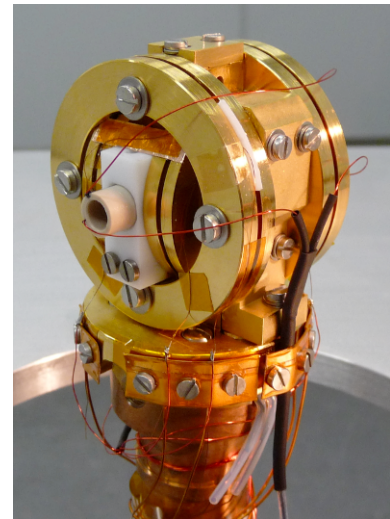


Abbildung 3.5: Foto des montierten Gesamtsystems.

Das hochfrequente Magnetfeld wird durch zwei kleinere, normalleitende Spulen (4) erzeugt, deren Symmetrieachse identisch zu der des größten supraleiten-

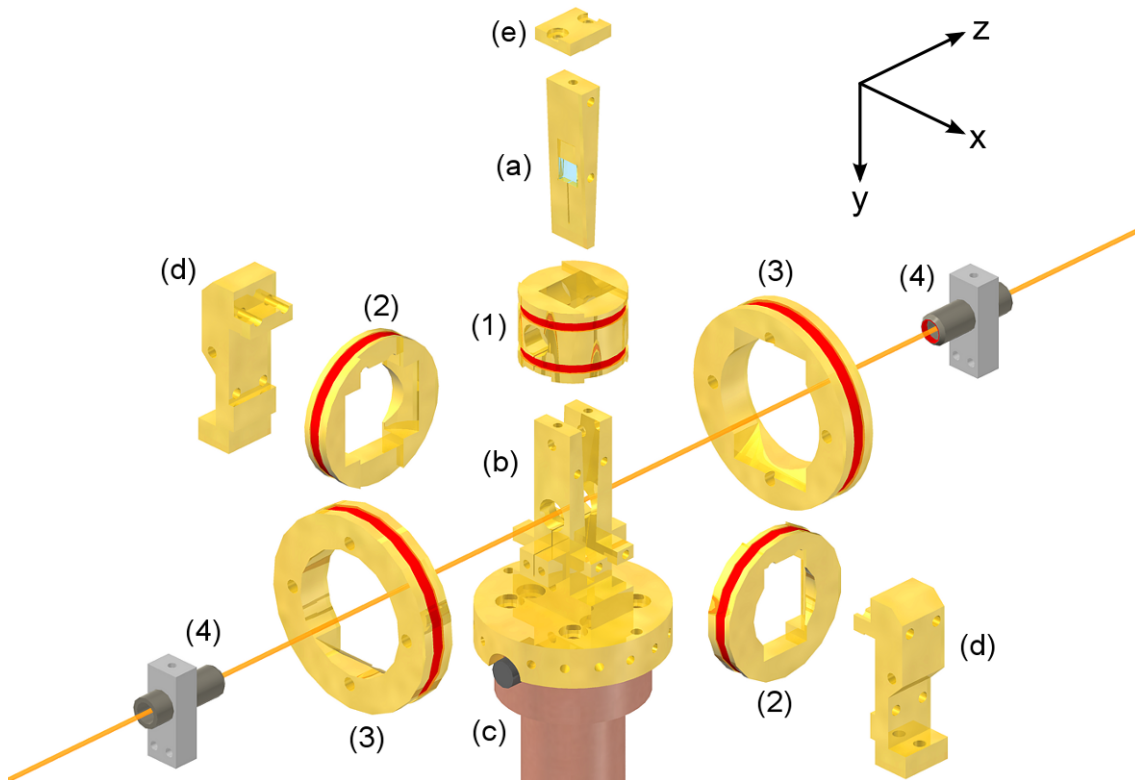


Abbildung 3.6: Explosionszeichnung des Kryostateninneren. Der Kristall ist in einem Keil (a) eingespannt, welcher in den Systemträger (b) gepresst wird. Dieser ist mit dem Kältefinger des Kryostaten (c) verschraubt. Die supraleitenden Spulen (1),(2),(3) werden durch die Spannbacken (d) mit dem Systemträger verbunden. Die HF-Spulen (4) werden von außen an den Kristall herangeschoben. Das Koordinatensystem ist oben rechts angezeigt.

den Spulenpaars (3) ist. Diese Geometrie weist die geringste Gegeninduktivität von HF- und statischen Spulen auf, so dass die Wechselwirkung zwischen diesen minimiert ist. Des Weiteren wurde das Gesamtsystem mit einem durchgehenden Schlitz versehen, um HF-induzierte Wirbelströme zu unterbinden.

3.5.2 Erzeugung statischer Magnetfelder

Die supraleitenden Spulen

In dieser Arbeit kommen zwei unterschiedliche Spulentypen zur Erzeugung der statischen Magnetfelder zum Einsatz. Um schwächere Felder ($B \lesssim \pm 200$ G) zu generieren, werden Spulen mit vergleichsweise geringer Windungszahl $N = 20 \dots 40$ verwendet (Niederfeldspulen). Hierdurch kann eine sehr gute Einstellgenauigkeit $\Delta B = \mu_0 \frac{8}{\sqrt{125}} \frac{N \cdot \Delta I}{r}$ erzielt werden. Des Weiteren wirkt sich in diesem Fall elektronisches Rauschen bzw. Fluktuationen der Stromstärke I nur sehr schwach auf das erzeugte Magnetfeld aus. Eine verringerte Auflösung, aber einen sehr großen Feldbereich von bis zu ± 2000 G, bieten hingegen die Hochfeldspulen, welche mehrere hundert Wicklungen pro Spule aufweisen. Tabelle 3.1 gibt einen Überblick über die wichtigsten Parameter der hier aufgebauten supraleitenden Spulen.

Tabelle 3.1: Kenndaten der supraleitenden Spulen zur Erzeugung statischer Magnetfelder.

Spulenparameter	Niederfeldspulen			Hochfeldspulen		
	Spule1	Spule2	Spule3	Spule1	Spule2	Spule3
Spulenradius r [mm]	9,6	14,6	19,6	9,6	14,6	19,6
Windungszahl N (pro einzelner Spule)	20	30	40	210	325	440
gem. Induktiv. L [μH] (normalleitend)	9,4	28,9	130,8	1270	2200	2860
gem. Widerstand R [Ω] (normalleitend)	8,5	19,4	34,76	96	225	482
Magnetfeld B_{10A} [G] (bei $I_{max} = 10A$)	187	185	184	1967	2002	2019
Auflösung ΔB [mG] ($\Delta I = 0,46mA$)	8,6	8,5	8,4	90,5	92,1	92,9

Um die geforderten Feldstärken mit moderatem Aufwand, d.h. verhältnismäßig kleinen Strömen, geringem Materialeinsatz und letztlich niedrigen Kosten, erzeugen zu können, besitzen die Spulen Durchmesser im Bereich weniger cm und wurden aus supraleitendem Material gefertigt. Alle Spulen wurden so ausgelegt, dass das geforderte Magnetfeld bei einer Stromstärke von $I = 10A$ erreicht wird. Der Spulendraht (Gesamtdicke 0,1 mm) besteht aus einem Niob-Titan-Filament, welches in einer Kupfermatrix eingebettet ist (GVLZ023 bzw. Supercon

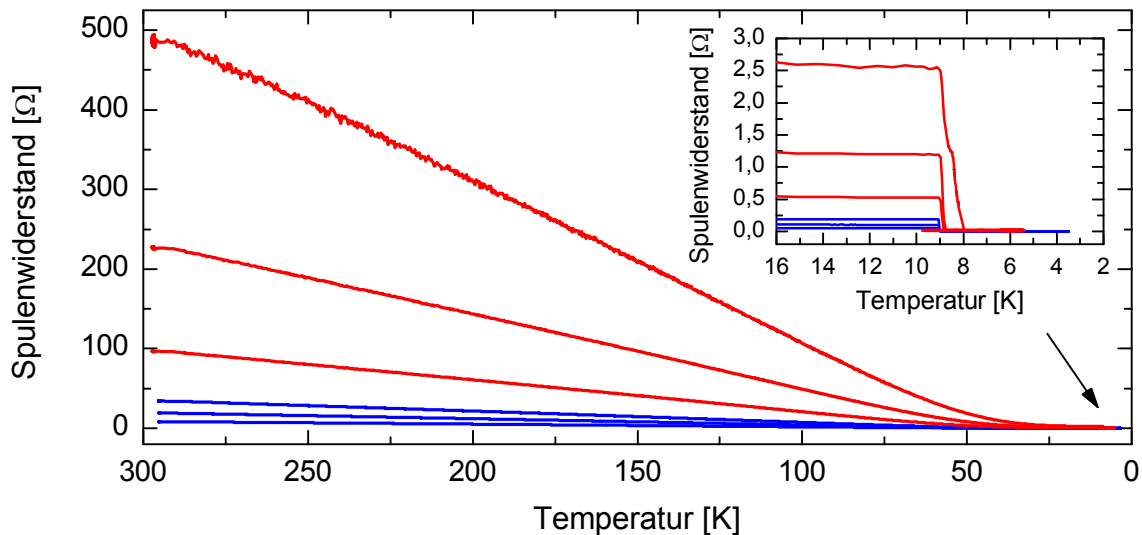


Abbildung 3.7: Elektrischer Widerstand der Hochfeldspulen (—) und der Niederfeldspulen (—) in Abhängigkeit der Temperatur. Die Detailansicht zeigt den Übergang von normalleitender zur supraleitenden Phase bei einer Sprungtemperatur von $T_c \approx 9\text{ K}$.

SC-T48B-M). Niob-Titan ist ein Typ-II-Supraleiter, welcher eine Sprungtemperatur von $T_c = 9,2\text{ K}$ aufweist [121]. Abbildung 3.7 zeigt die Änderung des elektrischen Widerstandes der Hochfeldspulen (—) sowie der Niederfeldspulen (—) beim Herunterkühlen des Kryostaten. Deutlich ist der lineare Abfall des elektrischen Widerstandes in der normalleitenden Phase aufgrund abnehmender Streuprozesse innerhalb der Kupfermatrix zu erkennen. Im Bereich kryogener Temperaturen geht die Abhängigkeit in einen horizontalen Verlauf über. Die mittlere freie Weglänge der Leitungselektronen ist dann lediglich durch Materialunreinheiten begrenzt. Bei einer Temperatur von ca. 9 K findet schließlich der Übergang in die supraleitende Phase statt (s. Detailansicht). Typische Temperaturen beim Betrieb des Experiments liegen bei ca. 4 K, so dass die Bedingungen für die Supraleitung gut erfüllt sind.

Feldverteilung

Um die Homogenität des durch die zueinander orthogonalen Spulenpaare erzeugten statischen Magnetfeldes abzuschätzen, wurden numerische Simulationen der Feldverteilungen durchgeführt. Eine direkte und umfassende Messung mittels einer Hallsonde ist aufgrund der räumlich begrenzten Verhältnisse innerhalb des geschlossenen Kryostaten und bei laufendem Betrieb nur sehr schwer möglich.

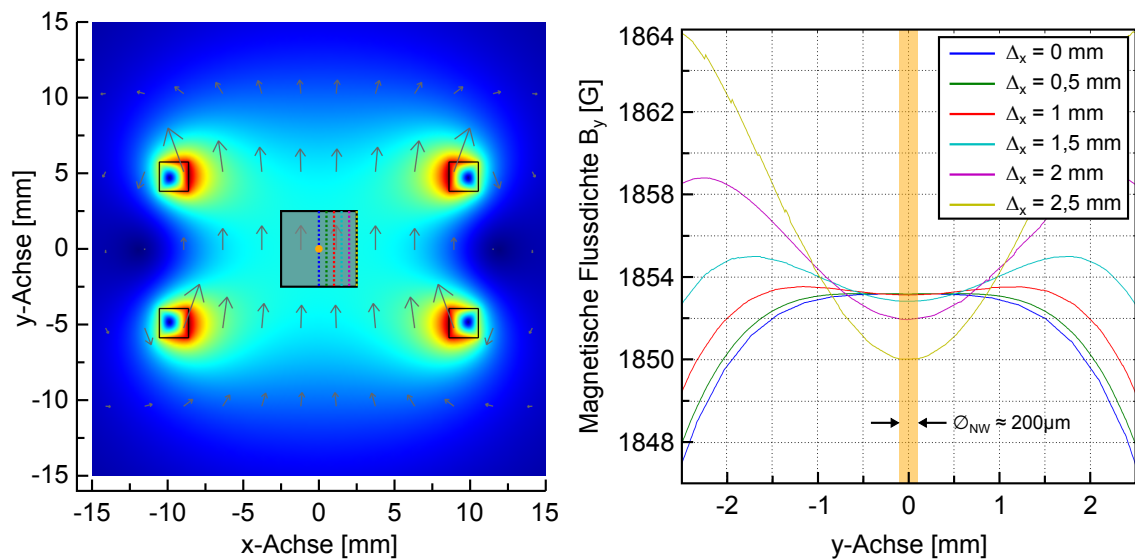


Abbildung 3.8: Simulation des Magnetfeldes, das durch das kleinste Spulenpaar in Hochfeldkonfiguration erzeugt wird. Links: Normierte Flussdichte in der Schnittebene senkrecht zur Strahlachse (oranger Punkt) und zentrisch zum Kristall (grauer Bereich). Rechts: Vertikale Schnitte der y -Komponente der magnetischen Flussdichte B in horizontalen Abständen von $\Delta_x = 0,5\text{ mm}$ (s. links). Der orange Bereich markiert die Breite des Nachweisstrahls ($\varnothing_N \approx 200\text{ }\mu\text{m}$) im Zentrum des Kristalls.

Abbildung 3.8 zeigt exemplarisch eine Simulation des Magnetfeldes, welches durch das kleinste Hochfeldspulenpaar ($r = 9,6\text{ mm}$, $N = 210$) bei einer Stromstärke von $I = 10\text{ A}$ erzeugt wird. Links ist die normierte Flussdichte in der x - y -Ebene dargestellt. Die beiden oberen bzw. die beiden unteren Quadrate skizzieren dabei

den Querschnitt ($\sim 2 \times 2 \text{ mm}^2$) je einer Spule. Der Kristall ist durch den grau hinterlegten Bereich markiert, in dessen Zentrum der Nachweisstrahl in z -Richtung verläuft (oranger Punkt). Eine quantitative Analyse der Feldverteilung im Bereich des Kristalls ergibt sich aus der rechten Grafik, in der die y -Komponente der Flussdichte entlang der links eingezeichneten Schnitte in y -Richtung gezeigt ist. Ausgehend von der Kristallmitte sind die Schnitte bis zum Rand des Kristalls um jeweils $\Delta_x = 0,5 \text{ mm}$ zueinander verschoben.

Im Zentrum des Kristalls wird eine Feldstärke von $1853,2 \text{ G}$ erreicht.¹ Die Variation der Feldstärke über den gesamten Bereich des Kristalls beträgt maximal $1,1 \%$. Betrachtet man hingegen nur den relevanten Wechselwirkungsbereich von Kristall und Laserstrahlung (orange hinterlegt, $\varnothing_N \approx 200 \mu\text{m}$) beträgt die maximale Abweichung lediglich 2 mG . Inhomogenitäten transversal zur Strahlrichtung liegen somit im Bereich von $10^{-4} \%$ und sind komplett vernachlässigbar. Die Feldvariation entlang der Strahlrichtung ist mit ca. $0,35 \text{ G}$ zwar größer, dennoch sind auch diese Inhomogenitäten im Bereich von $0,2 \%$ nicht kritisch (s. auch Kap. 6.2.5). Insgesamt kann also von einer sehr homogenen Feldverteilung ausgegangen werden. Wie die späteren Experimente zeigen werden, ist diese Annahme gerechtfertigt.

Steuerung

Die supraleitenden Spulen werden durch drei bipolare Leistungsverstärker (Servowatt DCP 390/20), welche hier als Gleichstromquelle aufgebaut sind, kontinuierlich gespeist. Diese liefern bei einer maximalen Steuerspannung von $\pm 10 \text{ V}$ einen Gleichstrom von $\mp 15 \text{ A}$. Die Steuerspannungen werden durch eine D/A-Wandlerkarte (NI PCIe 6363) generiert. Aufgrund der Diskretisierung von 16 bit, lässt sich der Spulenstrom in Schritten von $\Delta I = 0,46 \text{ mA}$ einstellen. Hieraus resultiert die spulenabhängige Auflösung des Magnetfeldes (s. Tab. 3.1). Für die Hochfeldspulen beträgt die Auflösung $\Delta B \approx 0,09 \text{ G}$, für die Niederfeldspulen gilt $\Delta B \approx 0,009 \text{ G}$. Damit liegen diese deutlich unterhalb der Stärke des Erdmagnetfeldes von ca. $0,5 \text{ G}$.

Zeitliche Fluktuationen des Magnetfeldes $\Delta B_{\text{Flukt.}}$ ergeben sich überwiegend aus dem elektronischen Rauschen der D/A-Wandlerkarte. Diese werden allerdings durch die teilweise großen Induktivitäten der Spulen gedämpft (s. Tab. 3.1). Bei einem Strom von $I = 1 \text{ A}$ liegt die Schwankung des Stromes im Bereich von $\Delta I_{\text{Flukt.}} \approx 0,2 \text{ mA}$. Hieraus folgen Feldfluktuationen im Bereich von $\Delta B_{\text{Flukt.}} \approx 40 \text{ mG}$ für die Hochfeldspulen und $\Delta B_{\text{Flukt.}} \approx 4 \text{ mG}$ für die Niederfeldspulen. Die Fluktuationen sind somit nur etwa halb so groß wie die Auflösung des Magnetfeldsystems.

Um einen stabilen Betrieb der supraleitenden Spulen zu gewährleisten, ist eine konstante Kühlung auf Temperaturen unterhalb der Sprungtemperatur von $T_c = 9,2 \text{ K}$ essentiell. Allerdings können bei hohen Stromstärken Ohmsche Verluste in den normalleitenden Zuleitungen dazu führen, dass es zu einem erhöhten Wärmeeintrag kommt. Wird die Sprungtemperatur lokal überschritten, kommt es aufgrund des konstanten Stromflusses zu einem fortschreitenden Zusammenbruch der Supraleitung. Bei hohen Strömen (bis 10 A) hat dies fast unweigerlich die Zer-

¹Die Differenz von ca. 6% zwischen simuliertem und in Tabelle 3.1 angegebenen Wert für $B_{10\text{A}}$ ergibt sich aus der in der Simulation beachteten räumlichen Ausdehnung des Spulenquerschnitts.

störung des nur 0,1 mm dicken Spulendrahtes zur Folge. Um dies zu verhindern, verfügt das gesamte System über einen Schutzmechanismus gegen den unkontrollierten Zusammenbruch der Supraleitung. Hierbei werden die Widerstände der Spulen mittels der Vierpolmessmethode ermittelt und kontinuierlich überwacht. Des Weiteren wird die Temperatur am Kältefinger aufgenommen. Überschreitet einer dieser Kontrollparameter eine festgelegte Grenze, wird der Stromfluss herabgeregt, so dass eine Beschädigung verhindert wird. Für eine detailliertere Beschreibung dieses Systems sei auf [122] verwiesen.

3.5.3 Erzeugung hochfrequenter Magnetfelder

Die hochfrequenten Magnetfelder werden durch ein normalleitendes Spulenpaar erzeugt, welches konzentrisch zum Kristall angeordnet ist (s. Abb. 3.6 (4)). Die Spulen besitzen einen Durchmesser von 5 mm und weisen jeweils $N = 5$ Windungen auf. Die Dicke des verwendeten Kupferdrahtes beträgt 0,2 mm. Die in den Spulen umgesetzten HF-Signale werden von dem in Abbildung 3.1 dargestellten HF-Netzwerk generiert. Ein Arbiträr-Funktionsgenerator (Agilent 33522 oder Tektronix AWG 5014) erzeugt abhängig vom Experiment entweder ein kontinuierliches sinusförmiges Spannungssignal oder komplexere Pulssequenzen (s. Kap. 4.3). Diese Signale werden durch eine HF-Weiche (mini-circuits ZYSWA-2-50DR) digital geschaltet. Die zeitlichen Parameter werden dabei durch TTL-Signale aus einer D/A-Wandlerkarte (NI PCIe 6363) bestimmt. Hierdurch können Pulse „ausgeschnitten“ bzw. unerwünschte Einträge unterdrückt werden. Ein Leistungsverstärker (EM Power 1028-BBM1C3KAJ) verstärkt anschließend die Signale bis zu einer Leistung von $P_{HF}^{max} = 10\text{ W}$, bevor diese über eine Impedanzanpassung in die HF-Spulen geleitet werden. Durch die Impedanzanpassung werden die überwiegend reellwertige Impedanz des Verstärkers $Z_{Verst.} \approx 50\ \Omega$ und die frequenzabhängige, komplexe Impedanz von HF-Spule und deren Zuleitung $Z_{HF} = R + i(\omega L - \frac{1}{\omega C})$ einander angeglichen. Signalreflexionen infolge von Potentialunterschieden werden somit unterbunden und es kann die maximale Wirkleistung in der HF-Spule umgesetzt werden. In der vorliegenden Arbeit werden zwei unterschiedliche Impedanzanpassungen verwendet. Weist das HF-Signal eine feste Trägerfrequenz auf, wird auf eine Schaltung basierend auf zwei Kondensatoren zurückgegriffen, welche in einem schmalen Frequenzintervall ($\lesssim 0,5\text{ MHz}$) besonders niedrige Leistungsreflexionen ($< 0,01\%$) garantiert [100]. Wird die Hochfrequenz hingegen durchgestimmt, wird lediglich ein $50\ \Omega$ Widerstand zwischen Spule und Nullleiter zur Anpassung verwendet. Bei dieser „Breitbandanpassung“ kommt es zwar zu höheren Leistungsreflexionen ($\approx 10\%$), allerdings wird die nutzbare Bandbreite auf mehrere 10 MHz erhöht [122].

Kapitel 4

Lichtspeicherung I

Erste Experimente

Die Speicherung von Lichtpulsen mittels EIT ist das zentrale Thema dieser Arbeit. Um die Lichtspeicherung in der komplexen Niveaustuktur von Pr:YSO zu realisieren, ist jedoch eine Präparation des Mediums erforderlich. Im folgenden Kapitel werden daher zuerst die hierfür notwendigen, grundlegenden Techniken vorgestellt. Anschließend wird die experimentelle Implementierung der Präparation und der Lichtspeicherung für den einfachen Fall ohne externe magnetische Kontrollfelder demonstriert. In einem ersten Schritt zur Verlängerung der Speicherzeit werden dann hochfrequente Magnetfelder zur Rephasierung der gespeicherten Kohärenzen eingesetzt. Hierbei werden auch charakteristische Oszillationen der Speichereffizienz beobachtet. Die Untersuchung dieses Effektes in Abhängigkeit externer Magnetfelder moderater Feldstärke bildet den letzten Teil des Kapitels.

4.1 Präparation des Mediums

$\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ ist ein spektroskopisch komplexes System. Der optische Übergang $^3H_4 \leftrightarrow ^1D_2$ weist eine inhomogene Verbreiterung von mehreren GHz auf (s. Kap. 1.4), die Aufspaltung der Hyperfeinniveaus liegt jedoch nur im Bereich von ca. 10 MHz. Alle Übergänge zwischen den Hyperfeinniveaus sind dipolerlaubt (s. Tab. 1.2), so dass infolge der inhomogenen Verbreiterung ein monochromatisches Laserfeld simultan mehrere Übergänge in verschiedenen Ensembles der Pr^{3+} -Ionen treibt. Einzelne Hyperfeinniveaus sind daher mittels direkter optischer Spektroskopiemethoden nicht auflösbar. Die Lichtspeicherung mittels EIT erfordert allerdings ein spektroskopisch präzise definiertes Niveausystem. Um ein Λ -System (s. Kap. 2) in der Vielzahl von Ensembles zu isolieren, und die Besetzung im Grundzustand zu präparieren, wird im Folgenden die Technik des optischen Pumpens angewandt.

4.1.1 Optisches Pumpen

Das Prinzip des optischen Pumpens ist für ein einzelnes Dreiniveausystem in Abbildung 4.1 dargestellt. Ein festfrequentes Laserfeld koppelt den Grundzustand $|1\rangle$ mit dem angeregten Zustand $|2\rangle$ und transferiert so Besetzung in das obere Niveau. Diese relaxiert abhängig von den Zerfallsraten Γ_{21} und Γ_{23} in den Grundzustand $|1\rangle$ bzw. in ein weiteres Niveau $|3\rangle$. Kann der spontane Zerfall von $|3\rangle$ nach $|1\rangle$ vernachlässigt werden, ergibt sich nach mehrmaligem Durchlauf des Pumpzyklus ein

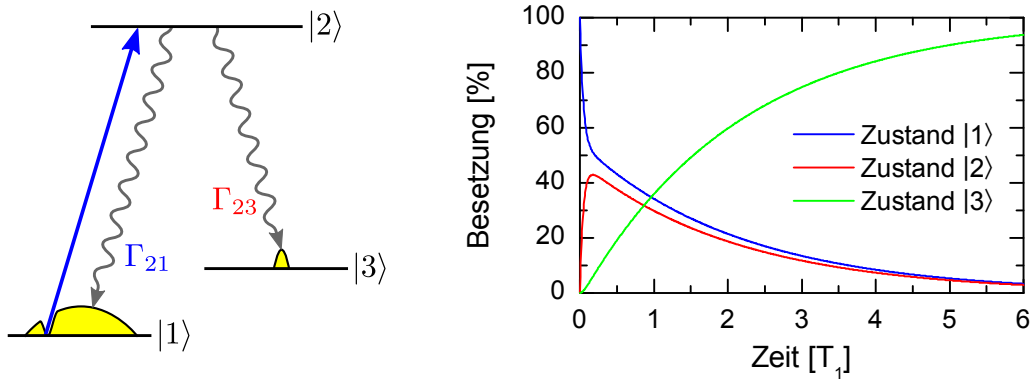


Abbildung 4.1: Prinzip des optischen Pumpens. Links: Schematische Darstellung des Nettotransfers der Besetzung im abgeschlossenen Dreineiveausystem. Rechts: Simulation der Besetzungsdynamik bei inkohärenter Anregung für gleiche Zerfallsraten $\Gamma_{21} = \Gamma_{23} = 1/T_1^*$.

Nettotransfer der Besetzung in den Zielzustand $|3\rangle$. Da der spontane Zerfall des angeregten Niveaus involviert ist, handelt es sich beim optischen Pumpen immer um einen inkohärenten Prozess.

Abbildung 4.1 zeigt rechts eine Simulation des Pumpprozesses basierend auf einem einfachen Ratengleichungsmodell. Hierbei wurden identische Zerfallsraten $\Gamma_{21} = \Gamma_{23} = 1/T_1^*$ und eine Pump-Rabi-Frequenz von $\Omega = \sqrt{20}/T_1^*$ angesetzt. Bereits nach einer Pumpdauer von $6 \cdot T_1^*$ ist über 90 % der Besetzung aus dem Zustand $|1\rangle$ in den Zustand $|3\rangle$ überführt worden. In Pr:YSO beträgt die natürliche Lebensdauer der angeregten Niveaus $T_1^* = 164 \mu\text{s}$. Die Relaxation zwischen den Grundzuständen findet hingegen auf einer Zeitskala von $T_1 \sim 100 \text{ s}$ statt. Ein effizientes optisches Pumpen ist daher bereits innerhalb weniger Millisekunden möglich.

Durch den Pumpprozess entleert sich Zustand $|1\rangle$ und das Medium wird für Strahlung resonant zum Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ transparent. Repräsentiert das Dreineiveausystem ein einzelnes Ensemble innerhalb einer inhomogen verbreiterten Mannigfaltigkeit, so stellt sich die Transparenz als „spektrales Loch“ im Absorptionsspektrum dar. Im Gegenzug entspricht die erhöhte Absorption auf dem Übergang $|3\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ einem sogenannten „Antiloch“. Die geänderten Besetzungen können somit durch Absorptionsmessung mittels eines schwachen Nachweisfeldes detektiert werden. Ist dieses resonant zum Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ und erfolgt die Absorptionsmessungen auf Zeitskalen deutlich kleiner als die Zerfallszeit T_1^* , ist die Änderung der Intensität I beim Durchlaufen des Mediums durch

$$\frac{dI}{dx} = (-n_1\sigma_{12} + \frac{g_1}{g_2}n_2\sigma_{21})I \quad (4.1)$$

gegeben. Hierbei sind n_1, n_2 die Besetzungsdichten der entsprechenden Zustände und σ_{12}, σ_{21} die Absorptionsquerschnitte für stimulierte Absorption bzw. stimulierte Emission. Nimmt man an, dass beide Zustände gleiche Entartung aufweisen ($g_1 = g_2$) und nutzt die Tatsache, dass die Absorptionsquerschnitte für beide Prozesse gleich sind ($\sigma_{12} = \sigma_{21} \equiv \sigma$), ergibt sich durch Integration das Beersche Absorptionsgesetz:

$$I(x) = I_0 e^{-\alpha x} \quad (4.2)$$

Hierbei ist $\alpha = (n_1 - n_2)\sigma$ der lineare Absorptionskoeffizient und I_0 die Intensität des Nachweisfeldes vor Durchlaufen des Mediums. Die experimentell zugängliche Größe der transmittierten Intensität I erlaubt somit die Untersuchung der Besetzungsdichten n_i innerhalb des Quantensystems. Alle im Rahmen dieser Arbeit experimentell ermittelten Absorptionskoeffizienten werden mittels (4.2) berechnet.

4.1.2 Spektrales Lochbrennen in Pr:YSO

Die Termstruktur von $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ ist deutlich komplexer als das für EIT typische Dreiniveausystem. Ohne externes Magnetfeld bestehen elektronischer Grundzustand 3H_4 und angeregter Zustand 1D_2 der Pr^{3+} -Ionen aus jeweils drei zweifach entarteten Hyperfeinniveaus $|\pm \frac{1}{2}\rangle$, $|\pm \frac{3}{2}\rangle$, $|\pm \frac{5}{2}\rangle$, deren Abstände im Bereich von ca. 10 MHz liegen (s. Kap. 1.3.2.1). Alle optischen Übergänge zwischen den Hyperfeinniveaus sind erlaubt, weisen aber teils stark unterschiedliche Übergangsmomente auf (s. Tab. 1.2). Zudem ist der Übergang $^3H_4 \leftrightarrow ^1D_2$ aufgrund des räumlich variierenden Kristallfeldes um mehrere GHz inhomogen verbreitert (s. Kap. 1.4).

Ein monochromatisches Laserfeld, dessen Frequenz im Bereich der inhomogenen Verbreiterung liegt, treibt daher neun Übergänge zwischen den drei Grund- und den drei angeregten Hyperfeinniveaus simultan. Dies ist schematisch in Abbildung 4.2 links dargestellt. Wird das Laserfeld kontinuierlich eingestrahlt, werden die Besetzungen der Grundzustands-Hyperfeinniveaus in den neuen relevanten Ensembles durch optisches Pumpen umverteilt. Dabei kommt es aufgrund der unterschiedlichen Oszillatorstärken zu verschiedenen Verzweigungsverhältnissen bei der Relaxation in die zwei nicht resonanten Grundzustands-Hyperfeinniveaus des entsprechenden Ensembles. Die Besetzungsumverteilung innerhalb der Grundzustände ist ebenfalls in Abbildung 4.2 links angedeutet.

Die geänderten Besetzungsverhältnisse können durch ein schwaches Nachweisfeld detektiert werden. Abbildung 4.2 zeigt rechts einen Vergleich zwischen einem experimentell ermittelten (—) und einem simulierten (—) Absorptionsspektrum nach dem optischen Pumpprozess in Pr:YSO. Dabei wurden Pump- und Nachweispuls im Strahlengang Kontroll 1 erzeugt und durch die Photodiode PD2 detektiert (s. Abb. 3.1). Die Spitzenintensitäten betrugen $I_p \approx 5 \text{ W/cm}^2$ und $I_N \approx 0,2 \text{ W/cm}^2$. Die Dauer des Pumpimpulses betrug $\tau_p = 5 \text{ ms}$. Nach einer Pause von 1 ms wurden die relaxierten Besetzungen mittels des Nachweispulses detektiert. Dieser wurde innerhalb von 10 ms über einen Frequenzbereich von $\Delta\nu_N = -30 \text{ MHz} \dots +30 \text{ MHz}$ relativ zur Frequenz des Pumpimpulses verstimmt.

Das Absorptionsspektrum weist eine charakteristische Struktur aus mehreren Absorptionslöchern bzw. Antilöchern auf. Diese entstehen durch den Nachweis der insgesamt 27 geänderten Besetzungen (s. Abb. 4.2 links) über die drei angeregten Hyperfeinniveaus. Prinzipiell verfügt das Absorptionsspektrum somit über 81 Merkmale, welche sich teilweise spektral überlagern und zu einem zentralen Loch, sechs Seitenlöchern und 42 Antilöchern führen [61, 72].

Die Breite der Löcher ist bestimmt durch die homogene Linienbreite der entsprechenden Übergänge sowie Verbreiterungen aufgrund der Laserparameter. Hierzu zählen insbesondere Frequenzschwankungen, Sättigungsverbreiterung sowie die Fourier-limitierte Bandbreite der Laserpulse. Reduziert man diese techni-

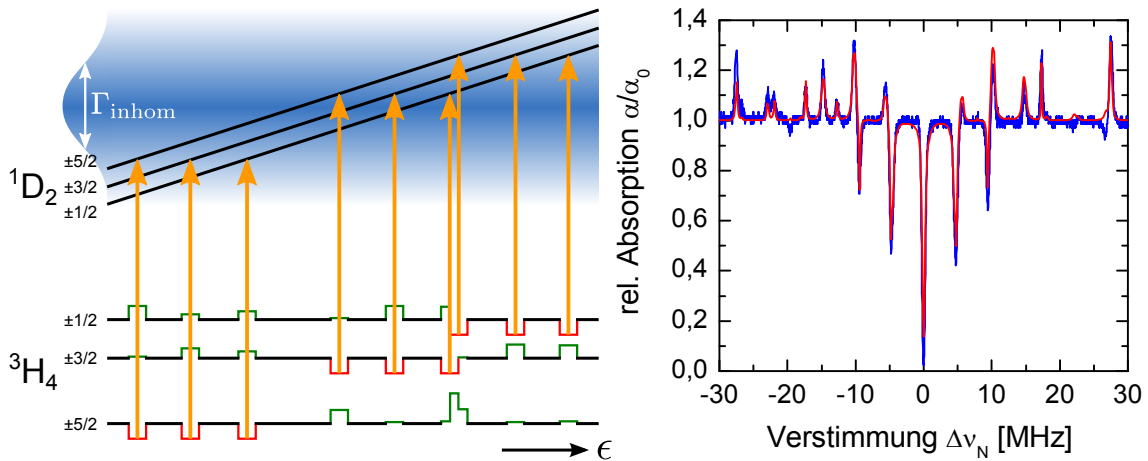


Abbildung 4.2: Spektrales Lochbrennen in Pr:YSO. Links: Simultanes optisches Pumpen des inhomogen verbreiterten Übergangs ${}^3H_4 \leftrightarrow {}^1D_2$ durch ein monochromatisches Laserfeld. Die Umverteilung der Besetzung erfolgt in neun Ensembles (Ensembleparameter ϵ) und ist schematisch in den Grundzuständen dargestellt. Rechts: Gemessenes (—) und simuliertes (—) Absorptionsspektrum nach dem Pumpprozess.

schen Probleme, so dass deren spektraler Einfluss kleiner als die Aufspaltung der Hyperfeinniveaus ist, kann die HFS optisch aufgelöst werden (s. Abb. 4.2 rechts). Beispielsweise entsprechen die Frequenzabstände vom zentralen Loch zu den Seitenlöchern gerade den Abständen zwischen den angeregten Hyperfeinniveaus von 4,6 bzw. 4,8 MHz (s. Kap. 1.3.2.1). Die Möglichkeit homogen verbreiterte Übergänge innerhalb einer spektral ausgedehnten inhomogenen Verbreiterung zu untersuchen, hat das spektrale Lochbrennen als wichtiges Spektroskopieverfahren im Bereich der seltenerd-dotierten Festkörper etabliert [42, 71].

4.1.3 Implementierung des Präparationsverfahrens

Sofern sich die Antilöcher, welche beim optischen Pumpprozess entstehen, spektral nicht überlappen, lassen sich diese diskreten Übergängen in einzelnen Ensembles zuordnen. Erzeugt man ein solches Absorptionsmaximum in einem Bereich verschwindender Absorption, d.h. ohne den Untergrund α_0 der inhomogenen Verbreiterung, ergibt sich eine spektral isolierte Absorptionslinie. Auf diesem Prinzip basiert das im Folgenden vorgestellte Verfahren zur Präparation eines definierten Λ -Systems innerhalb eines einzelnen Ensembles in Pr:YSO [69].

Die Präparationssequenz ist schematisch in Abbildung. 4.3 dargestellt. Sie besteht im Wesentlichen aus drei Laserpulsen, welche alle im Strahlengang Kontroll 1 erzeugt werden. Zuerst wird ein intensiver Pumpimpuls mit einer Spitzenleistung von $I_p \approx 30 \text{ W/cm}^2$ über eine Zeitdauer von $\tau_p = 60 \text{ ms}$ eingestrahlt. Dabei wird dessen Frequenz sechsmal von $\Delta\nu_p = 18 \text{ MHz}$ bis $\Delta\nu_p = 0 \text{ MHz}$ relativ zur Zentralfrequenz des inhomogen verbreiterten optischen Übergangs ${}^3H_4 \leftrightarrow {}^1D_2$ verstimmt. Durch das wiederholte optische Pumpen wird so ein Bereich minimaler Absorption – die „spectral pit“ – geschaffen. Im Folgenden werden alle Frequenzen relativ zum Beginn dieses Bereichs angegeben.

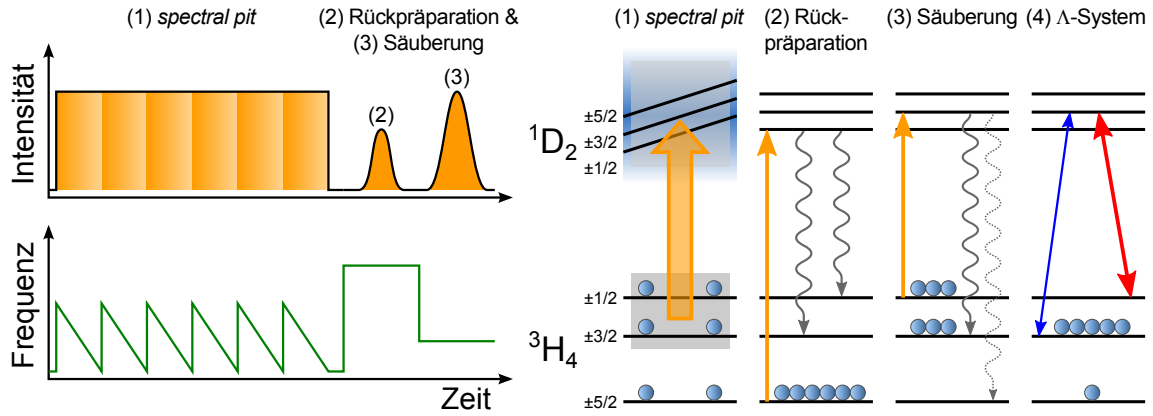


Abbildung 4.3: Präparation eines Λ -Systems in Pr:YSO. Links: Schematische Darstellung der Pulssequenz bestehend aus (1) Pumpimpuls zur Erzeugung einer *spectral pit*, (2) Rückpräparations- und (3) Säuberungspuls. Rechts: Wirkung der einzelnen Pulse auf die Besetzungen (blaue Kugeln) im relevanten Ensemble.

Der zweite Schritt besteht in der Rückpräparation einzelner Absorptionslinien in die *spectral pit*. Hierzu wird ein schwächerer und kürzerer Laserpuls verwendet, um den Einfluss von Sättigungsverbreiterung und Frequenzfluktuationen zu minimieren. Der Rückpräparationspuls weist einen zeitlich gaußförmigen Intensitätsverlauf mit einer Spitzenintensität von $I_R \approx 20 \text{ W/cm}^2$ und einer Dauer (FWHM) von $\tau_R = 300 \mu\text{s}$ auf. Durch die Wahl der relativen Frequenz von $\Delta\nu_R = 25,7 \text{ MHz}$ wird im hier relevanten Ensemble Besetzung in die Grundzustände $|\pm \frac{1}{2}\rangle$ und $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ rückgepumpt (s. Abb. 4.3 rechts).

Anschließend wird durch den Säuberungspuls ($I_{\text{Säub.}} \approx 30 \text{ W/cm}^2$, $\tau_{\text{Säub.}} = 600 \mu\text{s}$, $\Delta\nu_{\text{Säub.}} = 2,8 \text{ MHz}$) der Grundzustand $|\pm \frac{1}{2}\rangle$ leer gepumpt. Aufgrund der unterschiedlichen Oszillatorstärken (s. Tab. 1.2) zerfällt die Besetzung fast vollständig in den Grundzustand $|\pm \frac{3}{2}\rangle$. Dieser bildet das niedrigste Niveau des hier präparierten Λ -Systems aus Nachweisübergang $|^3H_4, \pm \frac{3}{2}\rangle \leftrightarrow |^1D_2, \pm \frac{3}{2}\rangle$ und Kontrollübergang $|^3H_4, \pm \frac{1}{2}\rangle \leftrightarrow |^1D_2, \pm \frac{3}{2}\rangle$ (s. blauer bzw. roter Pfeil in Abb. 4.3).

Der Nachweis der Präparation erfolgt durch Absorptionsspektroskopie. Ein schwacher Nachweispuls ($I_N \lesssim 0,5 \text{ W/cm}^2$) mit zeitlich nahezu rechteckförmigem Intensitätsverlauf (Anstiegszeit $\simeq 100 \text{ ns}$) und einer Pulsdauer von $\tau_N = 20 \mu\text{s}$ passiert den Pr:YSO-Kristall auf dem Strahlengang Nachweis 1. Indem die Frequenz des Pulses schrittweise von $\Delta\nu_N = -10 \text{ MHz}$ nach $\Delta\nu_N = 30 \text{ MHz}$ durchgestimmt wird, kann aus der transmittierten Intensität gemäß (4.2) ein Absorptionsspektrum erstellt werden. Wird der Nachweispuls zu verschiedenen Zeitpunkten der Präparationssequenz eingestrahlt, können die einzelnen Schritte der Präparation abgetastet werden. Hieraus lassen sich Rückschlüsse auf die schrittweise Umverteilung der Besetzung innerhalb der einzelnen Ensembles ziehen.

Ein Vergleich von experimentell ermittelten und simulierten Absorptionsspektren zeigt Abbildung 4.4. Als Referenz dient hierbei die *spectral pit* (---), welche durch den Nachweispuls nach einer 1 ms langen Relaxation nach dem ersten Präparationsschritt aufgenommen wurde. Das gemessene Absorptionsspektrum nach der vollständigen Präparationssequenz ist blau dargestellt (—○—). Auffällig sind die

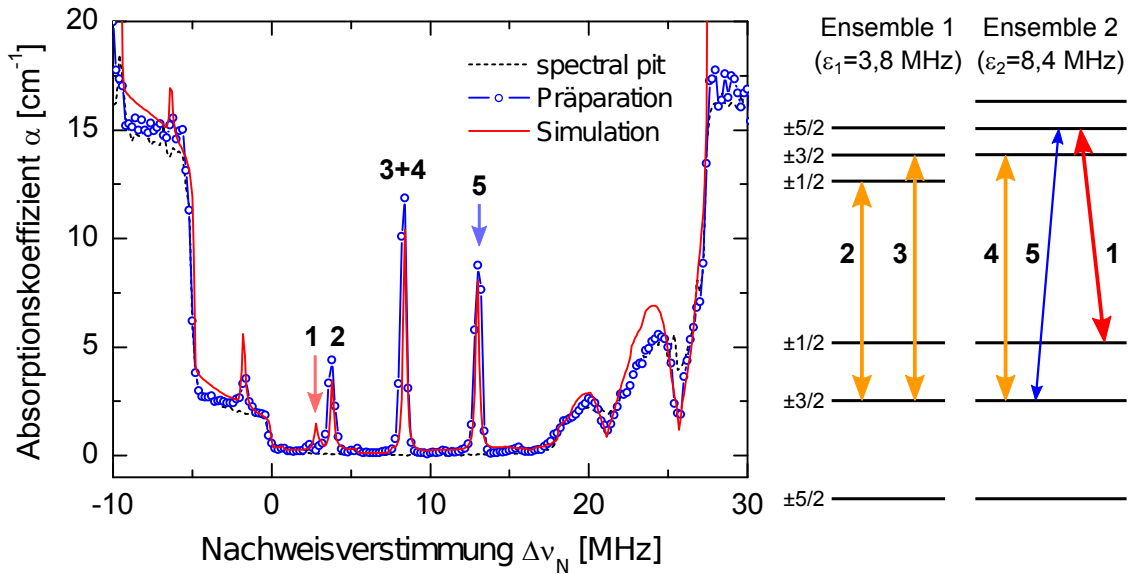


Abbildung 4.4: Links: Gemessenes (—○—) und simuliertes (—) Absorptionsspektrum nach mehreren Iterationen der kompletten Präparationssequenz. Die einzelnen Absorptionslinien lassen sich den optischen Übergängen in zwei Ensembles zuordnen (rechts).

vergleichsweise schmalen Absorptionslinien im Zentrum der *spectral pit*. Diese entstehen durch den Nachweis der Besetzung im Grundzustand $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ über mehrere angeregte Niveaus in zwei Ensembles (s. Abb. 4.4 rechts). Relevant ist allerdings nur Ensemble 2 (Ensembleparameter $\epsilon_2 = 8,4$ MHz), in dem das geforderte Λ -System präpariert wurde (s. auch Abb. 4.3). Zur Beobachtung von EIT bzw. zur Lichtspeicherung muss das Kontrollfeld eine relative Frequenz von $\Delta\nu_K = 2,8$ MHz (Übergang 1) und das Nachweisfeld eine relative Frequenz von $\Delta\nu_N = 13$ MHz (Übergang 5) besitzen. Die Differenz entspricht dann gerade der Hyperfeinaufspaltung der Grundzustände $|\pm \frac{1}{2}\rangle$ und $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ von 10,2 MHz, zwischen denen die atomare Kohärenz gespeichert werden soll.

Neben den experimentellen Daten zeigt Abbildung 4.4 eine Simulation (—) des erzeugten Absorptionsspektrums. Diese basiert auf einem Ratengleichungsmodell, das unter anderem die zeitlichen Pulsverläufe, die Zerfallsraten, den Laserjitter und die mehrmalige Iteration des Experiments berücksichtigt (s. Anhang B).

4.2 Lichtspeicherung in Pr:YSO

Grundvoraussetzung für eine effiziente Speicherung von Licht ist ein spektral schmales EIT-Transmissionsfenster. Die damit verbundene hohe normale Dispersion ist für die Pulskompression verantwortlich. Sie bestimmt, zu welchem Anteil der Nachweispuls während des Speicherprozesses im Medium ist (s. Kap. 2.3.2).

Zum experimentellen Nachweis von EIT werden die Pr^{3+} -Ionen erst durch die im vorigen Abschnitt eingeführte Pulssequenz im Grundzustand des Λ -Systems präpariert. Anschließend wird ein intensiver Kontrollpuls ($I_K \approx 49 \text{ W/cm}^2$, $\tau_K = 200 \mu\text{s}$, $\Delta\nu_K = 2,8$ MHz) eingestrahlt. Die maximale Rabi-Frequenz des Pulses

beträgt $\Omega_K = 2\pi \times 493$ kHz. Um die durch EIT geänderte Absorption zu untersuchen, wird gleichzeitig zum Kontrollpuls ein schwacher Nachweispuls ($I_N \lesssim 0,5$ W/cm², $\tau_N = 20$ μ s) eingestrahlt. Dessen Frequenz wird schrittweise um die Zweiphotonenresonanz des Λ -Systems verstimmt. Aus der transmittierten Intensität ergibt sich das in Abbildung 4.5 dargestellte Absorptionsspektrum. Deutlich ist der erwartete Einbruch der Absorption im Zentrum der präparierten Absorptionslinie bei $\Delta\nu_N = 13$ MHz zu erkennen. Auf der Resonanz wird nahezu vollständige Transmission erreicht. Die Breite des Transmissionsfensters liegt im Bereich von $\Gamma_{\text{EIT}}^{\text{exp}} \approx 200$ kHz.

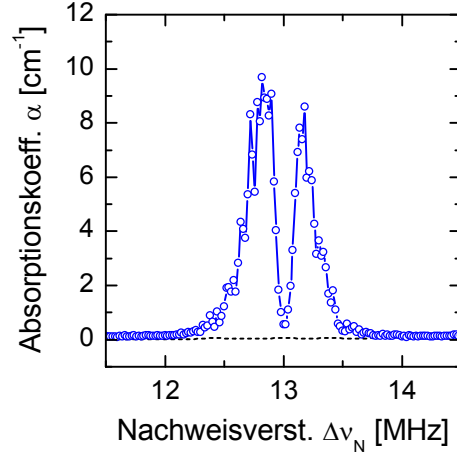


Abbildung 4.5: Einbruch der Absorption auf Grund von EIT.

Ein Vergleich mit Abbildung 2.2 zeigt, dass das Kontrollfeld nahezu resonant ist, und die Kontroll-Rabi-Frequenz im Bereich von $\Omega_K \approx 1 \cdot \gamma_{12}$ liegt. Nimmt man eine präparierte optische Dichte von $\alpha_0 L = 10$ cm⁻¹ \cdot 0,3 cm an, ergibt sich aus (2.24) eine theoretische Breite des EIT-Transmissionsfensters von $\Gamma_{\text{EIT}}^{\text{theo}} = 285$ kHz. Die leichte Diskrepanz zwischen experimentell bestimmter und berechneter EIT-Bandbreite erklärt sich vor allem durch das gaußförmige Intensitätsprofil des Kontrollstrahls. Der errechnete Wert $\Gamma_{\text{EIT}}^{\text{theo}}$ gilt nur für Ionen, welche vom Intensitätsmaximum des Kontrollstrahls und daher mit der maximalen Rabi-Frequenz Ω_K getrieben werden. Pr³⁺-Ionen, die nicht auf der Strahlachse liegen, erfahren aufgrund niedrigerer Rabi-Frequenzen eine geringere EIT-Aufspaltung. Im räumlichen Mittel wird daher meist eine reduzierte Breite $\Gamma_{\text{EIT}}^{\text{exp}} < \Gamma_{\text{EIT}}^{\text{theo}}$ detektiert.

Die Breite des Transmissionsfensters Γ_{EIT} bestimmt über das Zeit-Bandbreite-Produkt die minimale Pulsdauer eines zu speichernden Nachweispulses. Dessen spektrale Breite Γ_N sollte deutlich unterhalb von Γ_{EIT} liegen, damit der Puls nicht in den Flanken des EIT-Fensters inkohärent absorbiert wird (s. Kap. 2.3.4). Nimmt man $\Gamma_N \lesssim \frac{1}{2}\Gamma_{\text{EIT}}$ an, ist obige Forderung für den überwiegenden Teil des Nachweispulses bereits gut erfüllt.¹ Für Gauß- bzw. nahezu rechteckförmige Nachweispulse führt dies zu minimalen Pulsdauern im Bereich von $\tau_N \approx 4,4$ μ s.

Im Folgenden wird nun die Speicherung eines einzelnen Nachweispulses mittels EIT vorgestellt. Hierzu wird die bereits in Kapitel 2.3.2 vorgestellte Speichersequenz bestehend aus Kontroll-Schreibpuls, zu speicherndem Nachweispuls und Kontroll-Lesepuls verwendet (s. auch Abb. 2.3). Die nahezu rechteckförmigen Kontrollpulse besitzen identische Pulsparameter ($I_{S,L} \approx 49$ W/cm², $\tau_{S,L} = 200$ μ s, $\Delta\nu_{S,L} = 2,8$ MHz) und werden beide dem Strahlengang Kontroll 1 entnommen. Der zeitliche Abstand zwischen den Kontrollpulsen bestimmt die Speicherzeit Δt .

Der Nachweispuls entstammt Strahlengang Nachweis 1 und besitzt ebenfalls einen zeitlich annähernd rechteckförmigen Intensitätsverlauf. Aufgrund der obigen Abschätzungen wird eine Nachweispulsdauer von $\tau_N = 5$ μ s gewählt. Um einen ausreichend starken Signalpuls zu erhalten, wird die Nachweisintensität auf

¹Der ideale Fall $\Gamma_N \ll \Gamma_{\text{EIT}}$ lässt sich infolge der reduzierten Dispersion bzw. langen Pulsdauern ($\tau_N \propto \frac{1}{\Gamma_N}$) nur in Medien sehr hoher optischer Dichte verwirklichen.

$I_N \approx 2,2 \text{ W/cm}^2$ erhöht. Die für EIT notwendige Bedingung $\Omega_K \gg \Omega_N$ ist wegen $\Omega_K \approx 2\pi \times 493 \text{ kHz}$ und $\Omega_N \approx 2\pi \times 129 \text{ kHz}$ dennoch gut erfüllt. Die relative Frequenz des Nachweispulses ist mit $\Delta\nu_N = 13 \text{ MHz}$ in Zweiphotonenresonanz zu den Kontrollfeldern. Der Nachweispuls wird so eingestrahlt, dass dessen abfallende Flanke mit der des Schreibpulses übereinstimmt. Hierdurch wird die Nachweisinformation auf eine atomare Kohärenz der beiden Hyperfein-Grundzustände $|\pm \frac{1}{2}\rangle$ und $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ übertragen (s. Kap. 2.3.2). Um die im Medium gespeicherte Kohärenz wieder auszulesen, wird nach einer Speicherzeit Δt der Lsepuls eingestrahlt. Die Kohärenz wird in den Signalpuls rücktransformiert, welcher das Medium in Richtung des initialen Nachweispulses verlässt und anschließend detektiert wird.

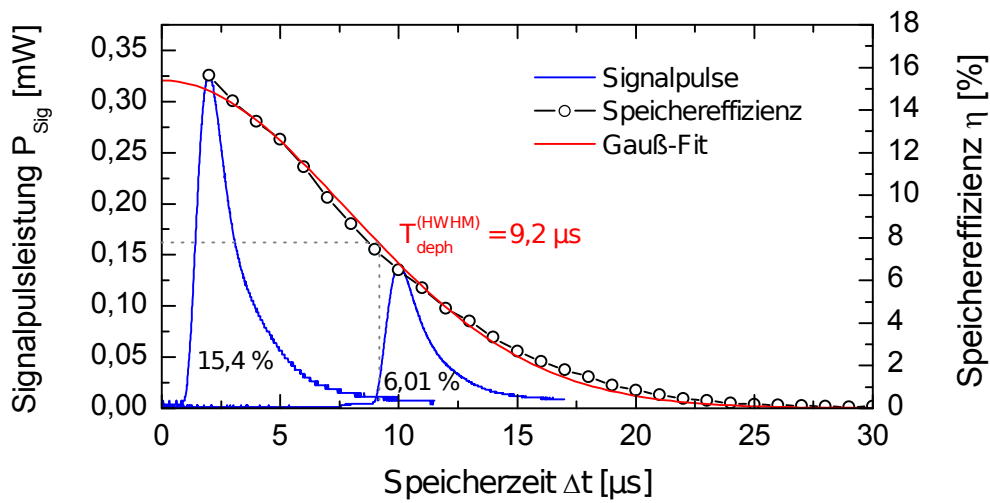


Abbildung 4.6: Zeitliche Abnahme der Speichereffizienz infolge der Dephasierung. An die experimentellen Daten (—○—) wurde ein gaußförmiger Zerfall (—) angepasst. Exemplarisch sind zwei Signalpulse (—) gezeigt, welche nach $\Delta t = 2 \mu\text{s}$ bzw. $10 \mu\text{s}$ ausgelesen wurden.

In Abbildung 4.6 sind exemplarisch zwei Signalpulse (—) dargestellt, welche nach einer Speicherzeit von $\Delta t = 2 \mu\text{s}$ und $\Delta t = 10 \mu\text{s}$ ausgelesen wurden. Aufgrund der in Kapitel 2.3.3 diskutierten Propagationseffekte ergibt sich die erwartete, modifizierte Pulsform (s. auch Abb. 2.5). Es werden Speichereffizienzen von $\eta = 15,4\%$ bzw. $\eta = 6,01\%$ detektiert. Diese liegen im Bereich der in Kapitel 2.3.3 simulierten Effizienz von $\eta = 12,4\%$. In optimierten Experimenten wurde für $\Delta t \rightarrow 0$ eine maximale Effizienz im Bereich von $\eta_{\text{max}} \sim 25\%$ nachgewiesen. Dies deckt sich mit den Erwartungen für die hier genutzte Strahlgeometrie [113].

Obwohl der Zerfall der präparierten Kohärenz innerhalb eines einzelnen Systems durch die Kohärenzzeit $T_2 \approx 500 \mu\text{s}$ gegeben ist, wird eine erheblich schnellere Abnahme der Speichereffizienz (—○—) detektiert. Die Ursache hierfür liegt in der inhomogenen Verbreiterung des genutzten Hyperfeinübergangs von $\Gamma_{\text{inhom}}^{\text{HFS}} \sim 30 \text{ kHz}$ [61]. Dies führt zur Dephasierung der individuellen Kohärenzen und einer im makroskopischen Mittel scheinbar kürzeren Zerfallsdauer, der Dephasierungszeit T_{deph} (s. Kap. 2.3.4). Nimmt man eine gaußförmige Verbreiterung des Übergangs an, kann infolge der Fourier-Relation auch von einem zeitlich gaußförmigen Zerfall ausgegangen werden. Eine entsprechende Anpassung (—) stimmt sehr gut mit den experimentell ermittelten Daten überein und liefert eine Dephasierungs-

zeit von $T_{deph} = 9,2 \mu\text{s}$. Andere Modelle gehen von einem exponentiellen Zerfall aus, so dass sich die Dephasierungszeit aus $T_{deph} = 1/(\pi\Gamma_{inhom}^{HFS})$ berechnet. Hieraus ergeben sich ebenfalls Dephasierungszeiten im Bereich von $T_{deph} \approx 10 \mu\text{s}$ [69].

4.3 Rephasierung

Die zeitliche Abnahme des Lichtspeichersignals aufgrund der Dephasierung tritt bei einer Kohärenzpräparation in einer Vielzahl von Spin-Ensembles auf. Da die Phasenentwicklung der individuellen Kohärenzen kontinuierlich verläuft, kann deren zeitliche Entwicklung durch geeignete Rephasierungspulse invertiert werden [100] (s. Abb. 4.7 links). Neben der Lichtspeichersequenz aus Kontroll- (—) und Nachweisfeld (—) werden hierzu zwei Hochfrequenzpulse (—) eingestrahlt, welche resonant zum genutzten Hyperfeinübergang $\Delta\nu_{HF} = 10,2 \text{ MHz}$ sind und eine Pulsfläche von $\mathcal{A} = \int \Omega(t) dt = \pi$ aufweisen. Durch die π -Pulse wird das Vorzeichen des Imaginärteils jeder Kohärenz $\text{Im}(\rho_{13})$ geändert. Dies bewirkt eine effektive Zeitumkehr der vorher divergierenden Kohärenzphasen (—). Entspricht der zeitliche Abstand der HF-Pulse $\Delta\tau$ gerade der halben Speicherzeit Δt , liegt nach einem kompletten Zyklus idealer Rephasierung erneut die initiale Überlagerung aller Einzel-Kohärenzen vor. Diese Nettokohärenz kann dann über den Lese-puls wieder in den Signalpuls rücktransformiert werden [100]. Die Rephasierung verläuft somit analog zur Technik der Spinechos [123] (s. auch Kap. 6.2.1).

Abbildung 4.8 zeigt einen Vergleich der Lichtspeicherung ohne (—○—) und mit (—○—) Rephasierung. Die Dauer der HF- π -Pulse betrug $\tau_\pi = 7 \mu\text{s}$, die Leistung lag bei $P_{HF} \approx 10 \text{ W}$. Im Gegensatz zur schnellen Abnahme der Speichereffizienz im Falle der Dephasierung ($T_{deph} \approx 10 \mu\text{s}$), ermöglicht die Rephasierung deutlich längere Speicherzeiten von mehreren hundert Mikrosekunden. Allerdings folgt der zeitliche Verlauf der Effizienz nicht dem theoretisch erwarteten exponentiellen Zerfall mit einer Zerfallszeit von $T_2 = 500 \mu\text{s}$ (---). Stattdessen wird eine ausgeprägte Oszillation detektiert, welche die Speichereffizienz teilweise erheblich reduziert.

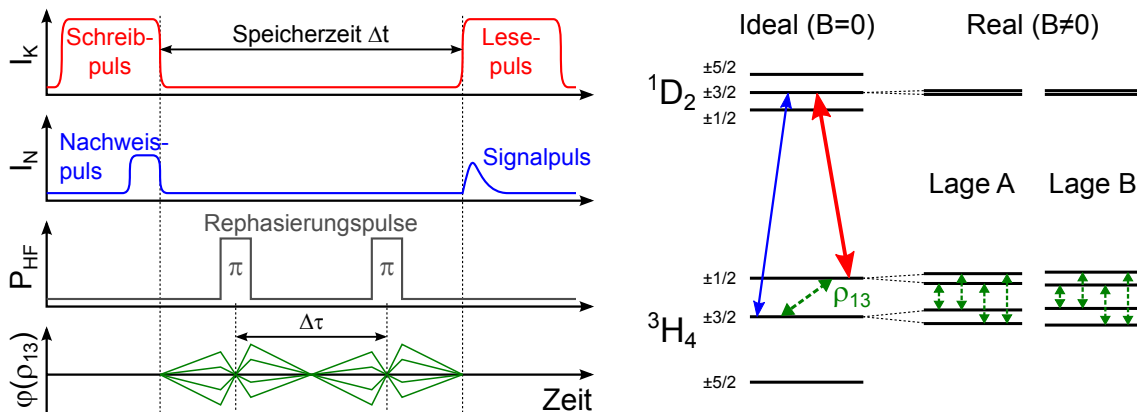


Abbildung 4.7: Links: Schematische Darstellung der Pulssequenz zur Lichtspeicherung und Rephasierung der präparierten Kohärenz. Rechts: Im entarteten Fall ($B = 0$) wird lediglich eine Kohärenz ρ_{13} präpariert. Unter realen Bedingungen ($B \neq 0$) werden hingegen in beiden magnetischen Lagen A und B jeweils vier unterschiedliche Kohärenzen präpariert.

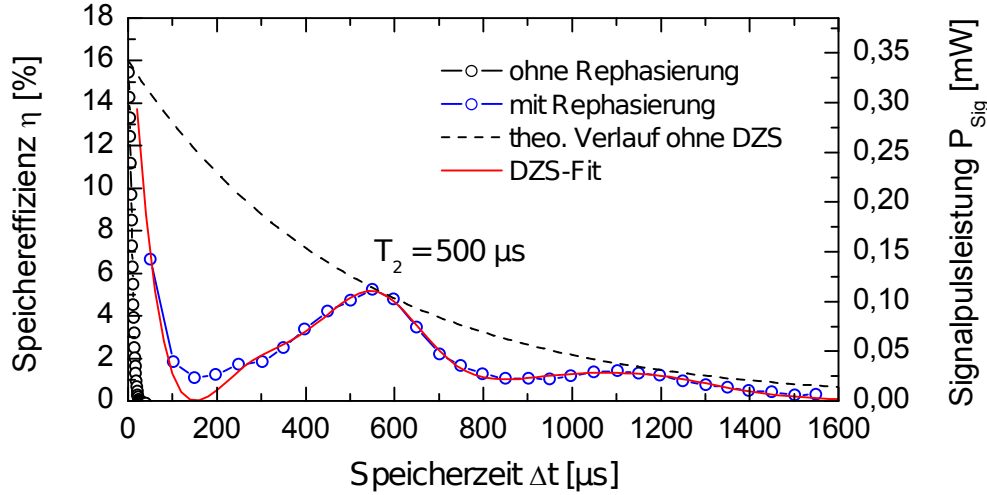


Abbildung 4.8: Zeitliche Oszillation der Speichereffizienz infolge der Dunkelzustandschwebung. Die Daten im Falle der Rephasierung ($-\circ-$) wurden auf Basis von (4.3) gefittet ($-$). Der schnelle Zerfall ohne Rephasierung ($-\circ-$) bestimmt die initiale Effizienz von ca. 16%, welche den theoretisch erwarteten Kohärenzzerfall ohne DZS ($---$) normiert.

Die Oszillation lässt sich durch die realen Bedingungen, unter denen das Experiment durchgeführt wurde, erklären. Bislang wurde lediglich ein einzelner inhomogen verbreiteter Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ betrachtet. Aufgrund externer Streufelder, wie z.B. das Erdmagnetfeld, wird aber die Entartung der beteiligten Hyperfeinniveaus $|\pm \frac{1}{2}\rangle$, $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ leicht aufgehoben. Ist die Aufspaltung kleiner als die Bandbreite der Zweiphotonenresonanz von Nachweis- und Kontrollfeld, wird durch den Lichtspeicherprozess nicht nur eine Kohärenz ρ_{13} , sondern bis zu vier unterschiedliche Kohärenzen $\tilde{\rho}_{13}^{(j)}$ pro magnetischer Lage präpariert (s. Abb. 4.7 rechts). Da die zeitliche Entwicklung der einzelnen Kohärenzen gemäß $\rho_{13}^{(j)}(t) = \rho_{13}(0) e^{(i\omega_{13}^{(j)} - 1/T_2)t}$ vom Frequenzabstand $\omega_{13}^{(j)}$ der Hyperfeinniveaus j abhängt, besitzen die Kohärenzen im Allgemeinen keine feste Phasenbeziehung zueinander. Dies führt zu einer zeitlichen Modulation des Signalpulses. Allerdings spielt dieser Effekt aufgrund der geringen Hyperfeinaufspaltungen von wenigen kHz und der daraus resultierenden Modulationsfrequenz im Bereich von 1 ms eine untergeordnete Rolle.

Entscheidend für die Oszillation der Speichereffizienz gegen die Speicherzeit Δt ist die zusätzliche Wechselwirkung der Kohärenzen mit den Rephasierungspulsen. Aufgrund deren großer Bandbreite erfolgt die Rephasierung der einzelnen Kohärenzen nicht individuell, sondern es werden alle Grundzustandsniveaus innerhalb einer magnetischen Lage miteinander gekoppelt. Nach Wechselwirkung mit einem π -Puls ergibt sich die Wahrscheinlichkeitsamplitude eines Niveaus (z.B. $|\pm \frac{3}{2}\rangle$) als Superposition der zwei Amplituden der gekoppelten Zustände (z.B. $|\pm \frac{1}{2}\rangle$). In Anhang C wird mittels dieses Ansatzes die Polarisation $P \propto \sum_j \mu_{13}^{(j)} \tilde{\rho}_{13}^{(j)}$ hergeleitet, welche nach einer vollen Rephasierungssequenz vorliegt. Da die Signaleistung P_{Sig} bzw. die Effizienz quadratisch von der vorliegenden Polarisation abhängt, gilt

$$P_{\text{Sig}} \propto (P_A + P_B)^2 \quad (4.3)$$

mit den voneinander unabhängigen Polarisationen $P_{A,B}$ der magnetischen Lagen.

Da sich die Oszillation der Kohärenzen und die daraus resultierende Schwebung der Lichtfelder ebenfalls im Bild des Dunkelzustandspolaritons (s. Kap. 2.3.2) formulieren lässt [124, 125], wird der Effekt auch als Dunkelzustandsschwebung (DZS) bezeichnet. Eine Anpassung auf Basis von (4.3) und (C.23) stimmt sehr gut mit dem gemessenen Verlauf der Speichereffizienz überein (s. Abb. 4.8) und liefert die erwarteten Hyperfeinaufspaltungen im Bereich weniger kHz.

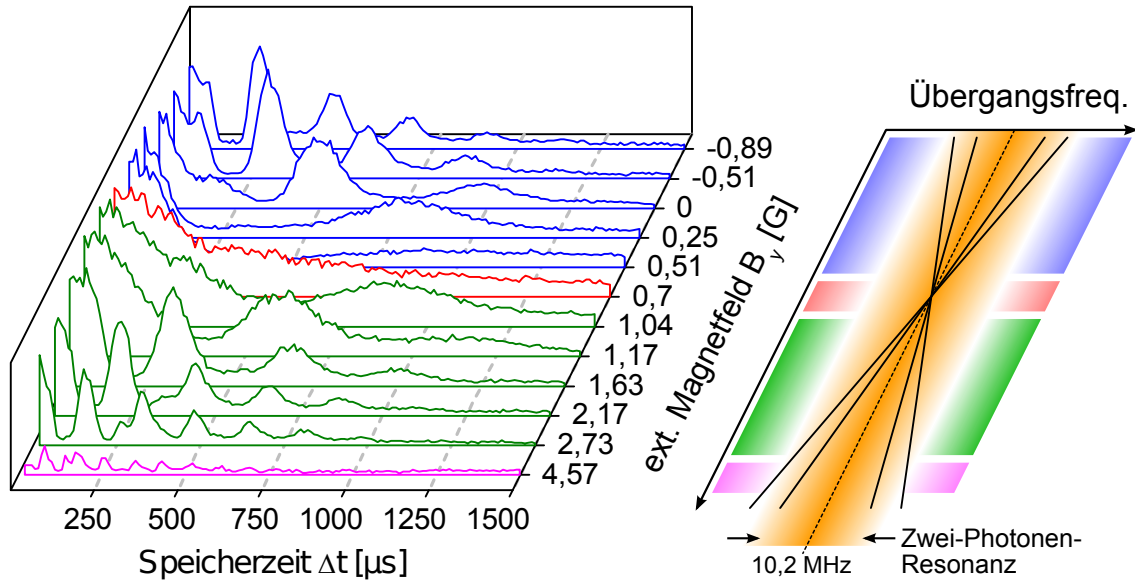


Abbildung 4.9: Kontrolle der Dunkelzustandsschwebung. Links: Oszillation der Lichtspeichereffizienz gegen die Speicherzeit Δt in Abhängigkeit eines externen Magnetfeldes B_y . Rechts: Die experimentellen Daten lassen sich in vier charakteristische Bereiche des Zeeman-aufgespaltenen Hyperfeinübergangs um die Zentralfrequenz 10,2 MHz einordnen.

Da die DZS von der Hyperfeinaufspaltung abhängt (s. Anhang C), sollte sich durch eine Kontrolle der Niveaus auch die Oszillation direkt manipulieren lassen. Um dies zu überprüfen, wurden mittels der supraleitenden Niederfeldspulen (s. Kap. 3.5.2) schwache Magnetfelder angelegt. Abbildung 4.9 zeigt links die Abhängigkeit der DZS von einem externen Magnetfeld in y -Richtung. Wird kein externes Feld angelegt ($B_y = 0$), ergibt sich der bereits bekannte Verlauf der Speichereffizienz mit einem prominenten Maximum bei $\Delta t \approx 500 \mu s$.² Werden nun Felder in negativer y -Richtung angelegt, erhöht sich die Hyperfeinaufspaltung (s. Abb. 4.9 rechts). Aufgrund der schnelleren Oszillation der Polarisierung nimmt auch die Oszillationsfrequenz der DZS zu. Wird B_y hingegen in den positiven Bereich erhöht, nimmt die Oszillationsfrequenz aufgrund der kompensierten Aufspaltung ab. Bei einem angelegten Feld von $B_y = 0,7 \text{ G}$ wird eine nahezu vollständige Kompensation des externen Streufeldes in y -Richtung erreicht (rot). Die Niveaus $|\pm \frac{1}{2}\rangle$, $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ sind nun fast entartet und es wird keine Oszillation mehr detektiert. Wird das Magnetfeld über diesen optimalen Wert hinaus erhöht (grün), ergibt sich erneut eine Zeeman-Aufspaltung der Niveaus und die Oszillation setzt wieder ein.

²Geringfügige Unterschiede zu Abbildung 4.8 entstehen durch eine abgeänderte Präparationssequenz [122] sowie leicht andere Streufelder. Die prinzipielle Form der DZS ist jedoch gleich.

Bei vergleichsweise großen Feldstärken (pink) spielt das schwache Streufeld nur noch eine untergeordnete Rolle. Die Niveaus werden so weit durch den Zeeman-Effekt verschoben, dass die Bandbreite der Laser nicht mehr ausreicht, um alle Zweiphotonen-Übergänge zwischen den Hyperfeinniveaus zu treiben. Die Speichereffizienz nimmt stark ab.

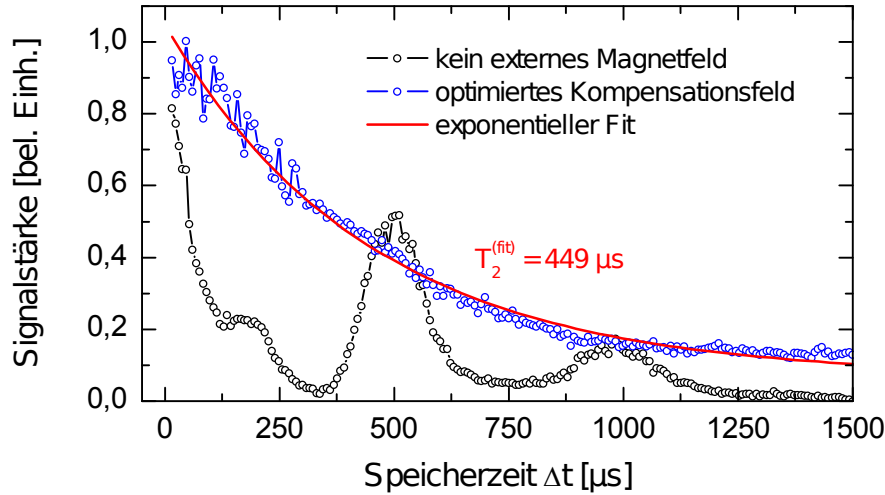


Abbildung 4.10: Zeitlicher Verlauf der Signalpulsstärke, ohne externes Magnetfeld ($-\circ-$) sowie mit Kompensationsfeld, welches in allen Raumrichtungen optimiert wurde ($-\circ-$). Die optimierte Kurve wurde mit einem exponentiellen Zerfall ($-$) angepasst.

Die maximal mögliche Speichereffizienz ergibt sich nur bei einer Kompensation des Streufeldes in allen drei Raumrichtungen. Um dies zu realisieren, wurde pro Raumrichtung nach je zwei Feldern mit unterschiedlichem Vorzeichen gesucht, für die sich ein identischer Oszillationsverlauf ergibt. Aufgrund der symmetrischen und nahezu linearen Aufspaltung bei den vorliegenden Feldern liefert die mittlere Feldstärke die optimale Kompensation in der entsprechenden Raumrichtung. In Überlagerung ergibt sich der Vektor des Kompensationsfeldes, welcher anschließend im Betrag optimiert wird [122]. Der hieraus erhaltene Verlauf des Lichtspeichersignals ist in Abbildung 4.10 blau dargestellt ($-\circ-$). Das Kompensationsfeld betrug in diesem Fall $\vec{B}_{komp} = 0,37 \text{ G} \cdot \vec{e}_x + 0,43 \text{ G} \cdot \vec{e}_y - 0,09 \text{ G} \cdot \vec{e}_z$. Im Vergleich zur DZS ohne externes Magnetfeld ($-\circ-$) ist die Oszillation vollständig unterdrückt und es wird der erwartete exponentielle Abfall beobachtet. Die Speichereffizienz erreicht über fast die gesamte Speicherzeit hinweg den maximal möglichen Wert. Eine punktuelle Ausnahme bildet das prominente Maximum bei $\Delta t \approx 500 \mu\text{s}$ für den Fall keines externen Magnetfeldes, welches den kompensierten Fall leicht übertrifft. Ursache hierfür sind vermutlich Gradienten des Hintergrundfeldes, die sich mit der genutzten Helmholtz-Geometrie nicht kompensieren lassen. Die zeitliche Abnahme des Lichtspeichersignals wurde durch eine Regression ($-$) angepasst und ergibt eine Dekohärenzzeit von $T_2 = (449 \pm 11) \mu\text{s}$. Dieser Wert stimmt gut mit publizierten Kohärenzzeiten im Bereich von ca. $500 \mu\text{s}$ überein, welche mittels Experimenten auf Basis von Zweipuls-Spin-Echos gemessen wurden [68].

Die DZS wurde bislang lediglich an gasförmigen Medien untersucht [124–127]. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte der Effekt erstmals in einem Festkörpermedium nachgewiesen [128] und aktiv kontrolliert werden [129].

Kapitel 5

Lichtspeicherung II

Experimentelle Erhöhung der Speicherkapazität

Im vorangegangenen Kapitel wurde die Speicherung eines einzelnen Lichtpulses mittels EIT vorgestellt. Zukünftige Anwendungen im Bereich der Quanteninformationsverarbeitung erfordern allerdings kohärente optische Speicher mit einer hohen Speicherkapazität [4, 17, 18]. Erst diese ermöglichen die praktikable Verarbeitung und Speicherung großer Datenmengen. Darüber hinaus können durch Protokolle, welche auf der parallelen Speicherung von Information beruhen, kürzere Kommunikationszeiten und höhere Fehlertoleranzen erzielt werden [19, 20].

Ein naheliegender Ansatz zur Steigerung der Kapazität eines optischen Speichers besteht in der Speicherung von Bildern, statt transversal unmodulierter Intensitätsverteilungen. Dieses einfache aber dennoch effektive Konzept hat in jüngster Vergangenheit großes Interesse im Bereich der Quantenspeicher erfahren, und wurde bislang fast ausschließlich in gasförmigen Medien implementiert [25–29].

Neben der Bildspeicherung existieren weitere Techniken zur Erhöhung der Speicherkapazität, deren Ursprung in der klassischen holographischen Datenspeicherung liegt [30]. Hierbei sind insbesondere das räumliche Winkelmultiplexing sowie das spektral aufgelöste Frequenzmultiplexing zu nennen, welche ebenfalls intensiv im Zuge der Quantenspeicherung untersucht werden [113, 130–132].

Im Folgenden wird die experimentelle Kombination von EIT mit der Bildspeicherung und Multiplexing-Techniken in Pr:YSO diskutiert.

5.1 Bildspeicherung

Die Speicherung von Bildern mittels EIT wurde mit Hilfe zweier unterschiedlicher Abbildungssysteme durchgeführt (s. Kap. 3.3). Um dem Nachweispuls die Bildinformation aufzuprägen, durchläuft dieser eine teiltransparente Maske (s. Abb. 3.2). Dabei verliert der Puls abhängig vom gewählten Bildmuster typischerweise einen Großteil seiner Energie. Hieraus resultieren vergleichsweise schwache Signale, welche zudem mit der CCD-Kamera über ein räumlich ausgedehntes Gebiet von mehreren mm^2 detektiert werden müssen. Die Signalstärke stellt somit einen kritischen Faktor in den hier diskutierten Experimenten dar. Daher werden im Folgenden meist Pulssequenzen verwendet, die auf hohe Signalleistung statt auf hohe Speichereffizienz optimiert wurden.

Aus obigen Gründen wirken sich Frequenzfluktuationen und Schwankungen der Laserintensität auch besonders kritisch auf die Qualität des ausgelesenen Bil-

des aus. Des Weiteren führen diffuse Reflexionen des intensiven Auslesepulses an den Oberflächen von Kristall, Kryostat und optischen Komponenten zu einem konstanten Untergrundmuster. Um diese störenden Effekte herauszufiltern, werden alle experimentell aufgenommenen Bildreihen mittels eines nachträglichen Selektions- und Mittelungs-Algorithmus ausgewertet. Hierdurch kann oft eine deutliche Verbesserung der Bildqualität erzielt werden. Für eine detaillierte Beschreibung dieses Verfahrens sei auf [120] verwiesen.

5.1.1 Bildspeicherung mittels des Fourier-Abbildungssystems

Mittels des in Kapitel 3.3.1 eingeführten Fourier-Abbildungssystems konnte im Rahmen dieser Arbeit erstmals die EIT-getriebene Speicherung eines Bildes in einem Festkörpermedium demonstriert werden. Die hierzu genutzte Präparationssequenz unterscheidet sich lediglich in Intensität und Dauer der Laserpulse von der zuvor beschriebenen Sequenz (s. Kap. 4.1.3). Die hier verwendeten experimentellen Parameter sind: (1) Pumpintensität $I_p = 157 \text{ W/cm}^2$, Pumpdauer $\tau_p = 84 \text{ ms}$, (2)+(3) Rückpumpintensität $I_R = 157 \text{ W/cm}^2$, Rückpumpdauer $\tau_R = 100 \mu\text{s}$ (s. auch. Abb. 4.3). Die Abfolge und die relativen Frequenzen der Pulse sind jedoch identisch, so dass sich ein vergleichbares Absorptionsspektrum ergibt.

Die Lichtspeichersequenz, bestehend aus Schreib-, Lese- und Nachweispuls, weist im Vergleich zu Kapitel 4.2 lediglich leicht veränderte Intensitäten von $I_{S,L} = 68 \text{ W/cm}^2$ und $I_N = 0,9 \text{ W/cm}^2$ auf. Um eine hohe Signalstärke zu erhalten, wurde der Nachweispuls zudem auf eine Dauer von $\tau_N = 20 \mu\text{s}$ verlängert.

Als zu speicherndes Bild wurde ein Muster in Form der Zahl „5“ gewählt. Um ein möglichst lokalisiertes Fourier-Bild im Zentrum des Kristalls zu erhalten, wurde eine vergleichsweise große Struktur von fast 1 mm Höhe genutzt (s. Abb. 5.1). Die minimal auflösbare Strukturgröße im Fourier-Aufbau wurde in Kapitel 3.3.2 auf Basis des Kontrollstrahldurchmessers zu $d_{\min} = 303 \mu\text{m}$ abgeschätzt. Entscheidend ist aber die Größe des Speichergebietes, welche hier zu $0,26 \text{ mm}^2$ bestimmt wurde [120]. Aufgrund dieser Apertur beträgt die effektive Auflösungsgrenze ca. $150 \mu\text{m}$. Abbildung 5.1 zeigt neben der verwendeten Maske eine Simulation der auf die Kamera projizierten „5“. Hierbei wurde die räumliche Filterung durch das begrenzte Speichergebiet mit einbezogen. Hohe Raumfrequenzen werden nicht gespeichert, so dass es im ausgelesenen Bild zum Verlust scharfer Konturen kommt.

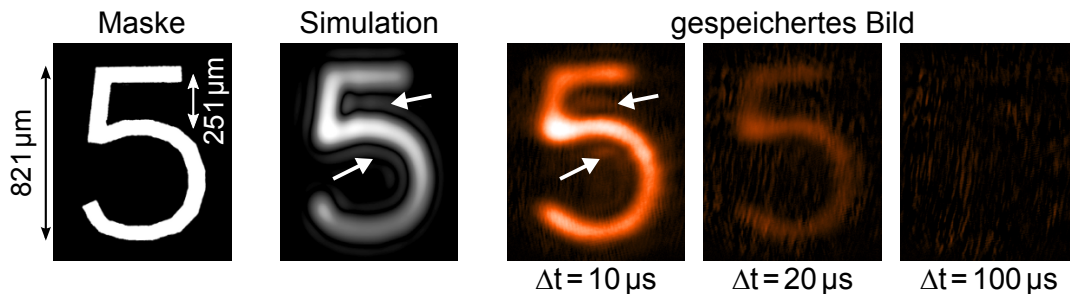


Abbildung 5.1: Speicherung der Zahl „5“ im Fourier-Aufbau. Neben der Maske ist eine Simulation der beugungsbegrenzten Abbildung sowie die experimentell gespeicherten Bilder dargestellt. Die Pfeile zeigen Beugungsstrukturen an.

In einer ersten Prinzipdemonstration wurden drei Bilder ohne HF-Rephasierung für Zeiten von $\Delta t = 10\ \mu\text{s}$, $20\ \mu\text{s}$ und $100\ \mu\text{s}$ gespeichert. Die von der Simulation vorhergesagte Intensitätsverteilung stimmt sehr gut mit den experimentell gespeicherten Bildern (s. insb. $\Delta t = 10\ \mu\text{s}$) überein. Beginnende Beugungsstrukturen (weiße Pfeile in Abb. 5.1) deuten allerdings darauf hin, dass keine wesentlich kleineren Objekte gespeichert werden können. Dennoch ist das hier demonstrierte Auflösungsvermögen von $251\ \mu\text{m}$ bzw. 4 Linien/mm vergleichbaren Experimenten in Rubidium-Gas mit Auflösungen von ca. 1,5 Linien/mm deutlich überlegen [26].

5.1.2 Bildspeicherung im Aufbau der reellen Abbildung

Die Speicherkapazität kann deutlich erhöht werden, wenn statt des optisch gefilterten Fourier-Bildes ein räumlich beschränktes, reelles Bild im Kristall gespeichert wird. Hierzu wird im Folgenden der in Kapitel 3.3.2 vorgestellte Aufbau der reellen Abbildung verwendet. Als Bildmuster wird erneut die Zahl „5“ gewählt, deren Höhe auf der Maske nun $565\ \mu\text{m}$ beträgt. Aufgrund des ersten Teleskops (s. Abb. 3.4) besitzt die reelle Abbildung im Zentrum des Kristalls eine Höhe von $212\ \mu\text{m}$ (s. Abb. 5.2). Der Linienabstand von ca. $65\ \mu\text{m}$ liegt somit deutlich oberhalb der theoretisch auflösbaren Strukturgröße von ca. $8\ \mu\text{m}$ (s. Kap. 3.3.2).

Die experimentellen Resultate der Bildspeicherung ohne Rephasierungstechnik sind in Abbildung 5.2 dargestellt. Die Speicherzeiten liegen zwischen $5\ \mu\text{s}$ und $50\ \mu\text{s}$. Deutlich ist der durch die Dephasierung bedingte Abfall der Intensität auf einer Zeitskala von $T_{\text{deph}} \approx 10\ \mu\text{s}$ zu erkennen. Nach einer Speicherzeit von $\Delta t = 50\ \mu\text{s}$ kann kein Bild mehr rücktransformiert werden.

Abbildung 5.3 zeigt hingegen eine Reihe von Bildern, welche unter Einsatz der Rephasierungstechnik gespeichert wurden. Die Breite der Rephasierungspulse betrug in diesem Fall $\tau_\pi = 2,8\ \mu\text{s}$ bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} \approx 10\ \text{W}$. Da kein externes Magnetfeld angelegt wurde, kommt es zur Oszillation der Speichereffizienz infolge der DZS (s. Kap. 4.3). Es ergeben sich lokale Maxima der Bildintensität bei $\Delta t = 400\ \mu\text{s}$ und $\Delta t = 800\ \mu\text{s}$ (rot eingerahmt). Im Vergleich zu Abbildung 4.8 ist die zeitliche Lage der Maxima um ca. $200\ \mu\text{s}$ bzw. $400\ \mu\text{s}$ verschoben. Die Ursache hierfür sind unterschiedliche Hintergrund-Streufelder, da die Experimente in verschiedenen Labors durchgeführt wurden. Durch die Rephasierungstechnik kann selbst bei einer Speicherzeit von 1 ms noch ein klar identifizierbares Bild ausgelesen werden. Die Speicherdauer von Bildern in Rubidium-Gas von wenigen

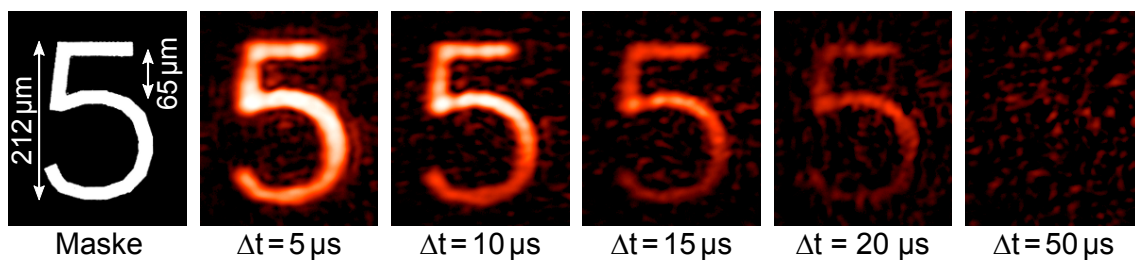


Abbildung 5.2: Speicherung der Zahl „5“ im Aufbau der reellen Abbildung ohne Rephasierung. Die zeitliche Abnahme der Intensität ist durch die Dephasierung gegeben.

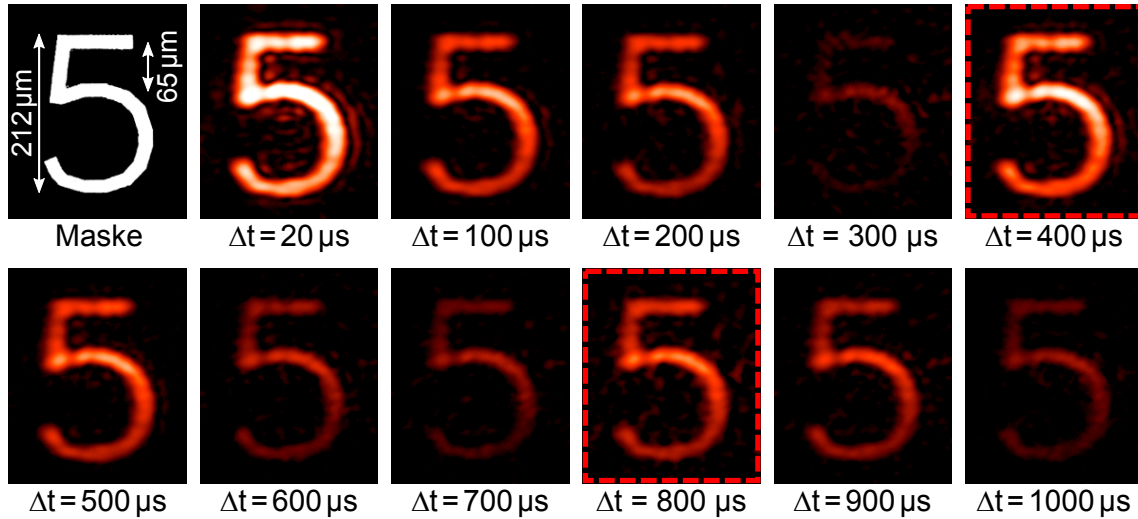


Abbildung 5.3: Speicherung der Zahl „5“ im Aufbau der reellen Abbildung mit Rephasierung. Die Signalstärke oszilliert infolge der DZS mit lokalen Maxima bei $\Delta t = 400 \mu\text{s}$ und $\Delta t = 800 \mu\text{s}$ (rot eingerahmt).

$10 \mu\text{s}$ [26, 27, 133] wird somit um zwei Größenordnungen übertroffen.

Als wichtiger Vorteil im Vergleich zu Experimenten in Gasen wird kein „Auswaschen“ der Bildinformation infolge atomarer Diffusionsprozesse detektiert. Um die Auflösung des hier genutzten Aufbaus der reellen Abbildung zu untersuchen, wurden horizontale Streifenmuster mit verschiedenen Linienabständen d gespeichert. Der Kontrast zwischen Linienzentrum und Mittelpunkt zweier Linien gegen die Liniendichte $1/d$ ergibt die Modulationstransferfunktion (MTF), welche das Auflösungsvermögen der Bildspeicherung charakterisiert (s. Abb. 5.4).

Ein Vergleich der experimentell ermittelten MTF für $\Delta t = 10 \mu\text{s}$ und $\Delta t = 100 \mu\text{s}$ zeigt, dass die Rephasierung den Kontrast kaum beeinträchtigt. Bis zu einer Liniendichte von 60 Linien/mm liegt dieser bei mindestens 80%. Bei höheren Liniendichten reduziert sich der Kontrast wie erwartet deutlich (vgl. Simulation).

Die bisher erreichte Auflösung von 1,5 Linien/mm in Rubidium-Gas [26] wird um einen Faktor 40 übertroffen. Dies verdeutlicht das hohe Potential seltenerd-dotierter Festkörper zur kohärenten Speicherung optischer Daten. Nutzt man das komplette Speichergebiet von $0,15 \text{ mm}^2$ ergibt sich eine Speicherkapazität von über 500 Bildpunkten. Ein Mikro-Array zur Speicherung einer vierstelligen Zahl von Qubits in einem einzigen Kristall erscheint somit durchaus realisierbar.

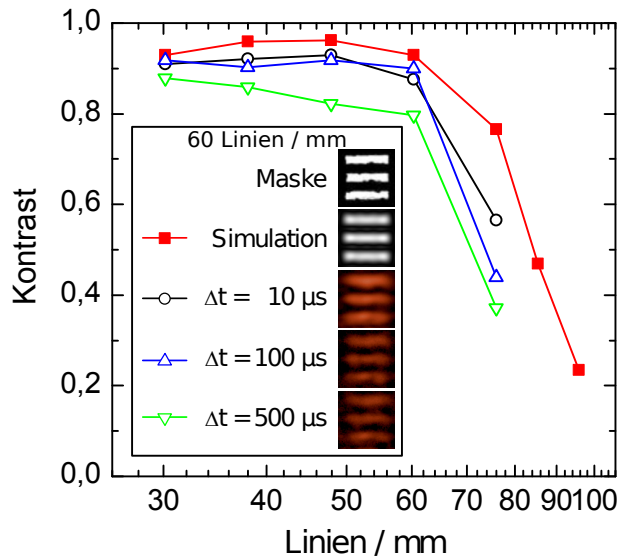


Abbildung 5.4: Modulationstransferfunktion für die Lichtspeicherung mittels EIT in Pr:YSO.

5.2 Frequenzmultiplexing

Die optischen Übergänge in seltenerd-dotierten Festkörpern weisen sehr unterschiedliche homogene und inhomogene Linienbreiten auf (s. Kap. 1.4). Dies ermöglicht die spektral aufgelöste Speicherung von optischer Information in verschiedenen Frequenzklassen (Ensembles) von Ionen (Frequenzmultiplexing). Neben der mehrfachen Datenspeicherung mittels spektralem Lochbrennen [134] wurden dabei bislang vor allem Zeit- und Frequenz-selektive optische Speicher untersucht [74, 135]. Durch diese können mehrere tausend Bit [75] oder sogar Bilder [77, 136] und Filme [76] in Form von Besetzungsunterschieden im Medium gespeichert werden. Die obigen Techniken sind allerdings aufgrund ihres dissipativen Charakters nicht zur Speicherung von Quantenzuständen geeignet [88, 137]. Um diesen Nachteil zu umgehen, können die klassischen Methoden mit quantenoptischen Speichertechniken wie EIT kombiniert werden [68].

Im Folgenden wird die simultane, EIT-getriebene Speicherung von Lichtpulsen bzw. Bildern mittels Frequenzmultiplexing in Pr:YSO vorgestellt. Dabei wird exemplarisch auf die Speicherung von zwei Nachweispulsen eingegangen.

5.2.1 Präparation des Mediums

Um die mehrfache Lichtspeicherung mittels Frequenzmultiplexing zu realisieren, muss die bisherige Präparation des Mediums (s. Kap. 4.1.3) derart erweitert werden, dass ein zweites, spektral isoliertes Λ -System vorliegt. Hierzu wird nach dem ersten Pumpimpuls ($P_p = 22 \text{ mW}$, $\tau_p = 84 \text{ ms}$), welcher von $\Delta\nu_p = 18 \text{ MHz}$ nach $\Delta\nu_p = 0 \text{ MHz}$ verstimmt wird, und dem ersten Rückpräparationspuls ($P_R = 28 \text{ mW}$, $\tau_p = 1,25 \text{ ms}$) der relativen Frequenz $\Delta\nu_R = 25,7 \text{ MHz}$, ein zweiter Rückpräparationspuls mit $\Delta\nu_{R'} = \Delta\nu_R + \delta\nu_e$ verwendet. Durch das zweimalige optische Pumpen wird das bereits aus Abbildung 4.4 bekannte Muster der Absorptionslinien dupliziert und taucht um $\delta\nu_e$ verschoben in der *spectral pit* auf. Anschließend wird durch zwei Säuberungspulse ($P_{\text{Säub.}} = 13,5 \text{ mW}$, $\tau_{\text{Säub.}} = 1,5 \text{ ms}$) der relativen Frequenzen $\Delta\nu_{\text{Säub.}} = 2,8 \text{ MHz}$ und $\Delta\nu_{\text{Säub.}'} = \Delta\nu_{\text{Säub.}} + \delta\nu_e$ die finale Umverteilung der Besetzungen in den einzelnen Ensembles durchgeführt. Für die komplette Präparationssequenz wird der Strahlengang Kontroll 1 genutzt.

Abbildung 5.5 zeigt links experimentell ermittelte Absorptionsspektren, welche durch eine einfache Präparation, d.h. ohne zweiten Rückpump- und Säuberungspuls (—), sowie durch die volle Pulssequenz (---) erzeugt wurden. Um spektral nicht-überlappende Absorptionslinien zu erhalten, wurde $\delta\nu_e = 2 \text{ MHz}$ gewählt. Deutlich kleinere oder größere Verstimmungen sind aufgrund von Resonanzen zwischen den angeregten Niveaus in unterschiedlichen Ensembles sowie des limitierten Präparationsbereichs nicht sinnvoll [138].

Deutlich ist in Abbildung 5.5 links die um $\delta\nu_e = 2 \text{ MHz}$ verschobene Absorptionsstruktur zu erkennen. Die einzelnen Linien lassen sich den rechts dargestellten Übergängen in insgesamt vier Ensembles zuordnen. Die Linien 1 bis 6 entsprechen den bekannten Übergängen in den Ensembles $\epsilon_1 = 3,8 \text{ MHz}$ und $\epsilon_2 = 8,4 \text{ MHz}$. Die Absorptionsmaxima 1' bis 6' entstehen wegen $\delta\nu_e = 2 \text{ MHz}$ durch Übergänge im Ensemble $\epsilon_{1'} = 5,8 \text{ MHz}$ und $\epsilon_{2'} = 10,4 \text{ MHz}$. Die im Weiteren genutzten

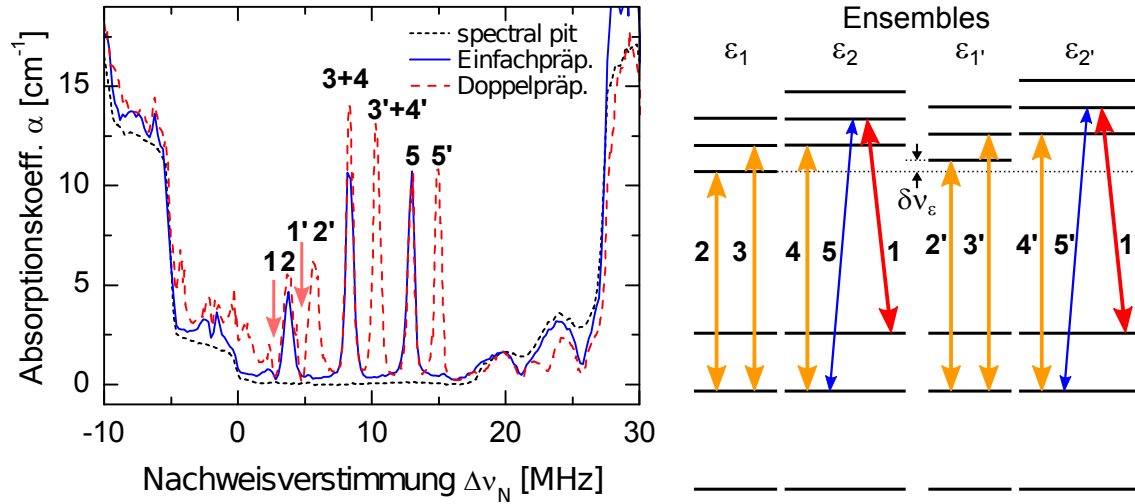


Abbildung 5.5: Links: Absorptionsspektren nach Präparation eines einzelnen (—) sowie eines doppelten (---) Λ -Systems für $\delta v_\epsilon = 2$ MHz. Die Absorptionslinien lassen sich den optischen Übergängen in vier Ensembles $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_1'$ und ϵ_2' zuordnen (rechts).

Λ -Systeme finden sich in den Ensembles ϵ_2 und ϵ_2' und können durch zueinander verstimmte Nachweispulse (Übergänge 5 und 5') und Kontrollfelder (Übergänge 1 und 1') simultan in EIT-Konfiguration getrieben werden. Die Nachweispulse können somit unabhängig voneinander in Form zweier spektral getrennter Grundzustandskohärenzen $\rho_{13}(\epsilon_2)$ und $\rho_{13}(\epsilon_2')$ gespeichert werden.

5.2.2 Experimenteller Nachweis des Frequenzmultiplexings

Der experimentelle Nachweis der mehrfachen Lichtspeicherung mittels Frequenzmultiplexing erfolgt durch die in Abbildung 5.6 dargestellte Pulssequenz. Diese wird nach einer Relaxationsdauer von 1 ms nach obiger Präparation eingestrahlt. Im ersten Schritt wird analog zu Kapitel 4.2 durch den Nachweispuls N1 und den Kontroll-Schreibpuls S1 die Grundzustandskohärenz $\rho_{13}(\epsilon_2)$ aufgebaut. Wie zuvor sind die relativen Frequenzen durch $\Delta v_{N1} = 13$ MHz und $\Delta v_{S1} = 2,8$ MHz gegeben. Im zweiten Schritt wird der Nachweispuls N2 mittels des Schreibpulses S2 in die zweite Grundzustandskohärenz $\rho_{13}(\epsilon_2')$ transformiert. Da dieser Prozess im um $\delta v_\epsilon = 2$ MHz verstimmten Ensemble ϵ_2' abläuft, betragen die relativen Frequenzen der Pulse $\Delta v_{N2} = 15$ MHz und $\Delta v_{S2} = 4,8$ MHz. Die Dauer der Nachweispulse ist mit $\tau_{N1,N2} = 9 \mu\text{s}$ ausreichend lang gewählt, um im Vergleich zur EIT-Bandbreite Γ_{EIT} spektral schmalbandig zu sein (s. Kap. 4.2). Weitere Pulsparameter können Abbildung 5.6 entnommen werden.

Nach der Speicherung der Nachweispulse kommt es zur Dephasierung der präparierten Kohärenzen (s. Kap. 4.2). Da der zweite Speicherprozess insgesamt mehr als $10 \mu\text{s}$ dauert, und somit im Bereich der Dephasierungszeit $T_{\text{deph}} \approx 10 \mu\text{s}$ liegt, ist ein direktes Auslesen der ersten Kohärenz $\rho_{13}(\epsilon_2)$ nach dem zweiten Speicherprozess nicht sinnvoll. Es ist daher erforderlich die Rephasierungstechnik (s. Kap. 4.3) zu nutzen, um die Dephasierung zu unterdrücken und akzeptable Speicherzeiten zu erlangen. Als Speicherzeit wurde hier $\Delta t = 550 \mu\text{s}$ gewählt, da dies dem ersten

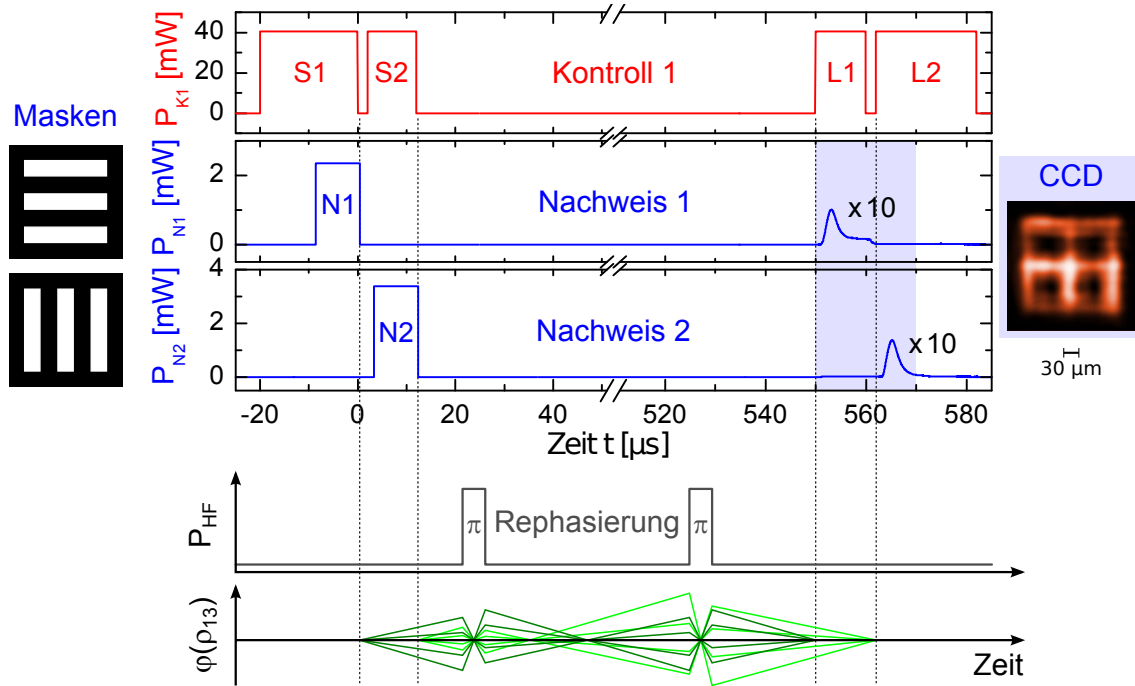


Abbildung 5.6: Mehrfache Lichtspeicherung mittels Frequenzmultiplexing in Pr:YSO. Die Pulsverläufe Kontroll 1 (—) und Nachweis 1 & 2 (—) sind experimentell ermittelte Daten. Die Rephasierungspulse (—) sowie der Verlauf der Kohärenzphasen $\varphi(\rho_{13})$ (—, —) sind schematisch eingezeichnet. Zur Bildspeicherung wurde den Nachweispulsen zueinander orthogonale Streifenmuster (Masken) aufgeprägt. Die Detektion des rücktransformierten Bildes (CCD) erfolgte während des hellblau hinterlegten Zeitraums.

prominenten Maximum der Speichereffizienz entspricht (s. Abb. 4.8). Externe statische Magnetfelder zur Unterdrückung der DZS wurden in den Experimenten zum Multiplexing nicht eingesetzt. Zur Rephasierung wird die in Kapitel 4.3 vorgestellte Sequenz aus zwei HF- π -Pulsen ($\tau_\pi = 7 \mu\text{s}$, $P_{\text{HF}} \approx 10 \text{ W}$) genutzt. Wie in Abbildung 5.6 skizziert, läuft die Rephasierung der beiden Kohärenzphasen $\varphi(\rho_{13}(\epsilon_2))$ (—) und $\varphi(\rho_{13}(\epsilon_2'))$ (—) aufgrund der unterschiedlichen Startzeitpunkte nicht symmetrisch ab. Dennoch kommt es in beiden Ensembles zur erfolgreichen Rephasierung nach $\Delta t = 550 \mu\text{s}$, wenn der Abstand der π -Pulse gerade $\Delta t/2$ entspricht. Die zeitliche Position der π -Pulse ist dabei in erster Näherung nicht relevant.

Die Rücktransformation des gespeicherten Lichtes erfolgt durch die Kontroll-Lesepulse L1 und L2, welche jeweils die Frequenz des entsprechenden Kontroll-Schreibpulses aufweisen. L1 wird bei $t = 550 \mu\text{s}$ und L2 bei $t = 562 \mu\text{s}$ eingestrahlt. Aufgrund der unterschiedlichen Startzeitpunkte entspricht dies einer Speicherdauer von $\Delta t = 550 \mu\text{s}$ für beide Speicherprozesse. Die rücktransformierten Signale sind in Abbildung 5.6 deutlich zu erkennen und tauchen zu den erwarteten Auslesezeitpunkten auf (hellblau hinterlegt). Die Speichereffizienzen liegen bei $\eta_1 = 1,63\%$ und $\eta_2 = 1,28\%$. Dies ist deutlich weniger als die erreichte Effizienz von ca. 5 % im Fall der Speicherung eines einzelnen Lichtpulses (s. Abb. 4.8). Die Ursachen hierfür sind einerseits nicht-resonante Kopplungen der intensiven Kontrollfelder mit der jeweils nicht-adressierten Kohärenz [138]. Andererseits wurde die vorgestellte Lichtspeichersequenz nicht auf maximale Effizienz, sondern auf

eine hohe Signalstärke optimiert, um die mehrfache Bildspeicherung mittels Frequenzmultiplexing nachweisen zu können.

Zur Bildspeicherung wird in den Strahlengängen Nachweis 1 und Nachweis 2 je eine Maske platziert (s. Abb. 3.1). Nachweispuls N1 wird ein horizontales Streifenmuster (\equiv), Nachweispuls N2 ein vertikales Streifenmuster (\equiv) aufgeprägt. Als Abbildungssystem kommt der Aufbau der reellen Abbildung zum Einsatz (s. Kap. 3.3.2). Die Liniendicke des reellen Bildes im Zentrum des Kristalls beträgt $30\mu\text{m}$ und liegt somit oberhalb der in Kapitel 5.1.2 bestimmten Auflösungsgrenze von 60 Linien/mm. Um die gespeicherten Bilder zu detektieren, wurden die Nachweisstrahlen auf die CCD-Kamera geleitet. Deren Belichtungszeit umfasst mit $20\mu\text{s}$ beide Signalpulse. In Abbildung 5.6 ist rechts das ausgelesene Bild gezeigt, welches wie erwartet der Überlagerung beider Einzelbilder entspricht.

Zum Nachweis der unabhängigen, simultanen Speicherung in beiden Frequenzkanälen wurden Experimente zum selektiven Lesen und selektiven Schreiben der Nachweisinformation durchgeführt. Abbildung 5.7 zeigt exemplarisch die Resultate zweier solcher Experimente.

Beim selektiven Lesen (links) werden beide Nachweismuster mittels Frequenzmultiplexing gespeichert. Anschließend wird lediglich Lesepuls L1 eingestrahlt, welcher nur das erwartete horizontal verlaufende Streifenmuster N1 ausliest. Ein störender Übertrag von Kohärenzinformation zwischen beiden Ensembles kann somit nicht beobachtet werden. Hierbei ist bemerkenswert, dass diese Folgerung nicht aus der Form des Signalpulses gezogen werden kann. Erst die Bildspeicherung kodiert die Kohärenzzugehörigkeit als räumliche Bildverteilung ($\rho_{13}(\epsilon_2) \leftrightarrow \equiv$, $\rho_{13}(\epsilon_2') \leftrightarrow \equiv$), so dass diese Information experimentell zugänglich wird.

Beim selektiven Schreiben (rechts) wird die komplette Kontrollsequenz genutzt, aber lediglich das vertikal verlaufende Nachweismuster N2 gespeichert. Beim Ausleseprozess wird wie erwartet nur der zweite Signalpuls detektiert. Ein un-

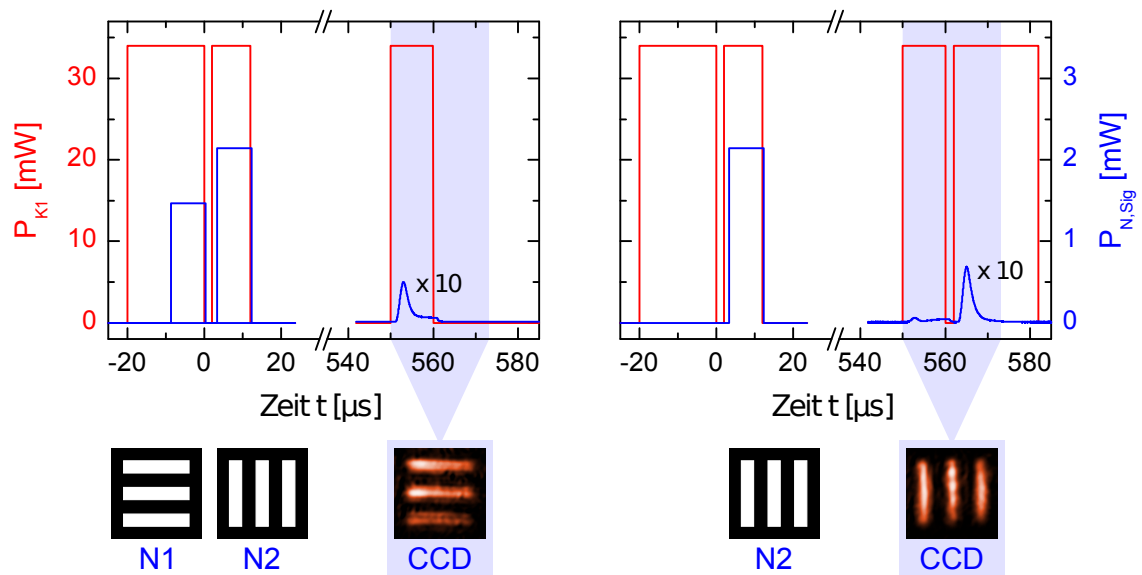


Abbildung 5.7: Experimentelle Pulsfolgen zum selektiven Lesen (links) und selektiven Schreiben (rechts) der Nachweisinformation mittels Frequenzmultiplexing in Pr:YSO.

gewolltes Auslesen durch den ersten Leseimpuls L1 ist aufgrund der Verstimmung von $\delta\nu_\epsilon = 2$ MHz fast vollständig unterdrückt. Andere Puls kombinationen wurden ebenso getestet und lieferten die erwarteten Ergebnisse [138, 139].

In den hier vorgestellten Experimenten wurde erstmals die Kombination von Bildspeicherung und Frequenzmultiplexing genutzt, um die Kapazität eines EIT-getriebenen Speichermediums zu erhöhen. Die Fähigkeit zum selektiven Lesen und selektiven Schreiben von Information sind wichtige Eigenschaften eines potentiellen Quantenspeichers und konnten erfolgreich demonstriert werden.

5.3 Winkelmultiplexing

Eine weitere Methode zur Erhöhung der Kapazität eines Speichermediums ist das Winkelmultiplexing, welches sich analog zur klassischen Holographie verstehen lässt [30, 140]. Hierbei wird ein bildtragender Nachweisstrahl mit einem kohärenten Referenzstrahl überlagert und das so entstehende Interferenzmuster als Amplituden- oder Phasenhologramm in einem geeigneten optischen Medium gespeichert. Wird dieses erneut mit dem Referenzstrahl beleuchtet, kann aufgrund der gespeicherten Phaseninformation der Nachweisstrahl rekonstruiert werden. Um die Speicherkapazität zu erhöhen, kann der Referenzstrahl unter verschiedenen Einfallswinkeln α eingestrahlt werden. Hierdurch entstehen mehrere Interferenzmuster, welche aufgrund der Bragg-Bedingung nur unter dem jeweils gleichen Winkel wieder ausgelesen werden können [141, 142].

Klassische Hologramme erlauben es nicht, zeitliche Pulsverläufe oder gar den vollständigen Quantenzustand des Lichtes zu speichern [143, 144]. Daher hat die Kombination von klassischem Winkelmultiplexing und quantenoptischen Speichertechniken, wie EIT, in jüngster Zeit großes Interesse erfahren [113, 130, 145]. Hierbei wird statt der Bragg-Bedingung die Impulserhaltung zwischen den Laserfeldern ausgenutzt, um optische Daten winkelabhängig speichern zu können [131, 132]. Die Selektivität der mehrfachen Lichtspeicherung beruht also auf Prinzipien der Phasen Anpassung und damit auf den Propagationsrichtungen der Laserpulse. Um diese räumliche Komponente in das Modell der Lichtspeicherung mit aufzunehmen, müssen die Rabi-Frequenzen um Terme $e^{i\vec{k}\vec{r}}$ erweitert werden [131]. Hieraus ergibt sich, dass die Amplitude des Signalfeldes bzw. die finale Ausleseeffizienz gemäß

$$\eta_L \propto d^2 \text{sinc}^2(\Delta k d/2) \quad (5.1)$$

kritisch von der Phasenfehlanpassung $\Delta\vec{k} = \vec{k}_N - \vec{k}_S + \vec{k}_L - \vec{k}_{Sig}$ abhängt [131, 132]. Dabei sind \vec{k} die Wellenvektoren der einzelnen Laserfelder und d die Wechselwirkungslänge, die in etwa der Kristalldicke entspricht. Vernachlässigt man die marginalen Unterschiede zwischen den Beträgen der einzelnen Wellenvektoren (dies ist wegen $v_{opt} \gg v_{HFS}$ gut erfüllt), lässt sich die Phasenfehlanpassung aus einfachen geometrischen Überlegungen zu $\Delta k = 4 \sin(\alpha/2) \sin(\Delta\alpha/2)$ herleiten. Dabei ist α der Winkel zwischen Schreib- und Nachweispuls, $\Delta\alpha$ beschreibt hingegen eine mögliche Winkelverstimmung beim Ausleseprozess, d.h. zwischen Schreib- und Leseimpuls. Eine Abschätzung der Winkelselektivität nach (5.1) zeigt, dass bereits ab

$\Delta\alpha \approx 0,5^\circ$ Ausleseeffizienzen von wenigen Prozent vorliegen. Dies deckt sich mit experimentellen Messungen des Winkelmultiplexings bei der Speicherung einfacher Lichtpulse von *Zhai et al.*, welche unter ähnlichen Bedingungen in Pr:YSO durchgeführt wurden [131, 132]. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit gewählte Winkelverstimmung von $\alpha_2 - \alpha_1 = 1,2^\circ$ ist somit ausreichend, um ein unbeabsichtigtes Auslesen der nicht-adressierten Kohärenz zu vermeiden.

Im Folgenden wird die mehrfache, EIT-getriebene Speicherung von Lichtpulsen bzw. Bildern mittels Winkelmultiplexing in Pr:YSO vorgestellt. Dabei wird exemplarisch auf die Speicherung von zwei Nachweispulsen eingegangen.

5.3.1 Präparation des Mediums

Im Gegensatz zum Frequenzmultiplexing wird beim Winkelmultiplexing nicht in unterschiedlichen Frequenzkanälen gespeichert. Die simultane Speicherung verschiedener Bilder erfolgt unter verschiedenen Winkeln in einem einzelnen Frequenzensemble. Analog zu Kapitel 4.1.3 wird eine Präparationssequenz aus jeweils einem Pumpuls ($P_p = 5,8 \text{ mW}$, $\tau_p = 84 \text{ ms}$), einem Rückpumpuls ($P_R = 27,4 \text{ mW}$, $\tau_R = 1,25 \text{ ms}$) und einem Säuberungspuls ($P_{\text{Säub.}} = 2,8 \text{ mW}$, $\tau_{\text{Säub.}} = 1,5 \text{ ms}$) aus dem Strahlengang Kontroll 1 verwendet. Die relativen Frequenzen sind unverändert, so dass sich das bekannte Absorptionsspektrum (s. Abb. 4.4) mit dem präparierten Λ -System in Ensemble ϵ_2 ergibt [138].

5.3.2 Experimenteller Nachweis des Winkelmultiplexings

Um mehrere Lichtpulse mittels EIT-getriebenem Winkelmultiplexing zu speichern, sind Kontrollstrahlen notwendig, welche die Nachweisstrahlen unter verschiedenen Winkeln im Kristall treffen. Dies ist mit dem in Kapitel 3.3.2 beschriebenen Aufbau der reellen Abbildung möglich, welcher im Folgenden verwendet wird. Die Winkel der Strahlengänge Kontroll 1 und Kontroll 2 zur Nachweisachse betragen außerhalb des Kristalls $\alpha_1 \approx 1,5^\circ$ bzw. $\alpha_2 \approx 2,7^\circ$.

Die genutzte Pulssequenz zur mehrfachen Lichtspeicherung mittels Winkelmultiplexing ist in Abbildung 5.8 dargestellt. Im ersten Schritt wird, analog zu den bisherigen Experimenten, der Nachweispuls N1 aus Strahlengang Nachweis 1 mittels des Schreibpulses S1 aus Strahlengang Kontroll 1 in die Grundzustandskohärenz $\rho_{13}(\alpha_1)$ transformiert. Anschließend wird Nachweispuls N2 aus Strahlengang Nachweis 2 von Schreibpuls S2 gespeichert. Da S2 Strahlengang Kontroll 2 entstammt, wird beim zweiten Speicherprozess aufgrund des anderen Winkels die Grundzustandskohärenz $\rho_{13}(\alpha_2)$ aufgebaut. Beide Speicherprozesse finden also im selben Frequenzensemble ϵ_2 statt. Die Nettokohärenz ergibt sich somit als Superposition beider Einzelkohärenzen. Des Weiteren folgt daraus, dass alle Kontrollpulse S1, S2, L1, L2 identische Frequenzen von $\Delta\nu_{K1,K2} = 2,8 \text{ MHz}$ und alle Nachweispulse N1, N2 eine Frequenz von $\Delta\nu_{N1,N2} = 13 \text{ MHz}$ aufweisen. Weitere Pulsparameter können Abbildung 5.8 entnommen werden.

Zur Erhöhung der Speicherzeit wird analog zum Frequenzmultiplexing (s. Abb. 5.6) eine Rephasierungssequenz aus zwei HF- π -Pulsen genutzt (nicht in Abb. 5.8 gezeigt). Die gesamte Pulsfolge ist so aufgebaut, dass die Speicherzeit

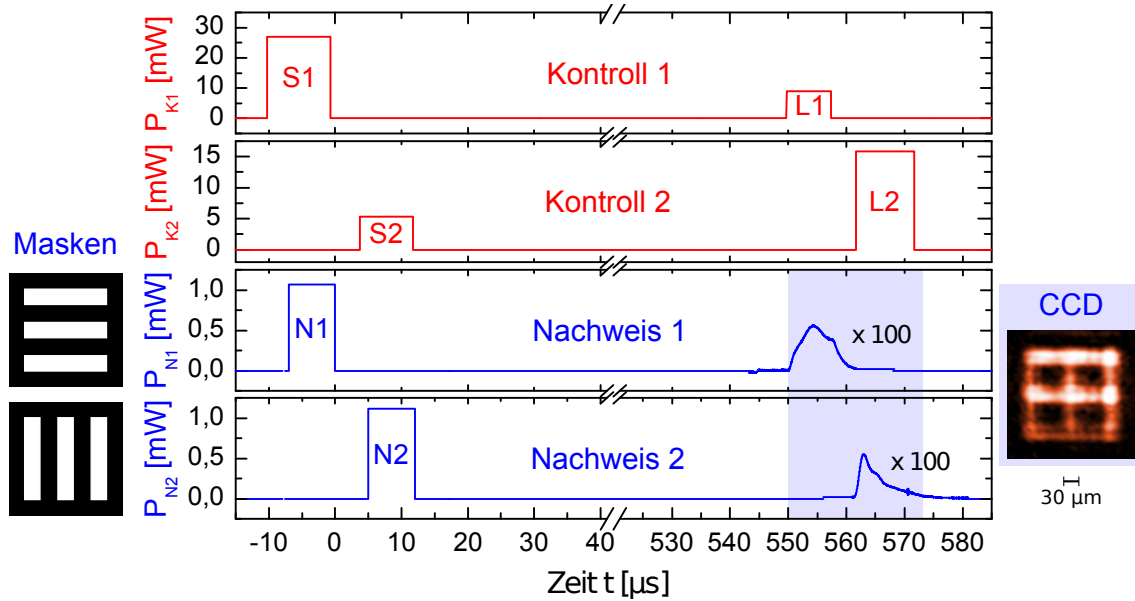


Abbildung 5.8: Experimentelle Pulsfolge zur mehrfachen Lichtspeicherung mittels Winkelmultiplexing in Pr:YSO. Die Rephasierung verläuft analog zu Abbildung 5.6 und ist nicht eingezeichnet. Zur Bildspeicherung wurde den Nachweispulsen zueinander orthogonale Streifenmuster (Masken) aufgeprägt. Der Zeitraum zur Detektion des rücktransformierten Bildes (CCD) ist hellblau hinterlegt.

für beide Speicherprozesse $\Delta t = 550 \mu\text{s}$ beträgt, und somit dem ersten ausgeprägten Maximum der DZS (s. Abb. 4.8) entspricht. Durch den Lesepuls L1, welcher unter einem Winkel $\alpha_1 \approx 1,5^\circ$ einläuft, wird die Kohärenz $\rho_{13}(\alpha_1)$ in den ersten Signalpuls rücktransformiert. Anschließend wird durch Lesepuls L2 ($\alpha \approx 2,7^\circ$) die Kohärenz $\rho_{13}(\alpha_2)$ ausgelesen. Die resultierenden Signalpulse tauchen zu den erwarteten Auslesezeitpunkten auf und weisen Effizienzen von $\eta_1 = 0,47\%$ und $\eta_2 = 0,26\%$ auf. Diese fallen im Vergleich zum Frequenzmultiplexing deutlich geringer aus. Ursache hierfür ist die unbeabsichtigte Wechselwirkung der Kohärenzen mit jeweils einem Kontrollpuls des nicht beteiligten Strahlenganges. Um diesen „Lösch“-Effekt [130] zu minimieren, werden für die relevanten Kontrollpulse S2 und L1 niedrigere Intensitäten verwendet (s. Abb. 5.8).

Zum Nachweis der Bildspeicherung wird den Pulsen N1 und N2 ein horizontales (\equiv) bzw. ein vertikales (\equiv) Streifenmuster aufgeprägt (Liniendicke im Kristall: $30 \mu\text{m}$). Das ausgelesene Bild wird von der CCD-Kamera detektiert, deren Belichtungszeit mit $23 \mu\text{s}$ beide Signalpulse umfasst. Es ergibt sich die erwartete Überlagerung beider Einzelbilder (s. Abb. 5.8 rechts).

Um die Selektivität des Lese- bzw. des Schreibprozesses zu untersuchen, werden analog zum Frequenzmultiplexing, Experimente mit jeweils nur einem Lesepuls bzw. einem Nachweispuls durchgeführt (s. Abb. 5.9). Beim selektiven Lesen (links) werden wie zuvor beide Nachweismuster \equiv und \equiv unter den Winkeln α_1 bzw. α_2 gespeichert. Um nur eines der Bilder wieder auszu-lesen, wird anschließend nur Lesepuls L1 eingestrahlt. Wie erwartet wird lediglich Muster \equiv detektiert (CCD). Obwohl die Speicherung im selben Ensemble ϵ_2 stattfindet, kann kein Kohärenzübertrag während Δt beobachtet werden.

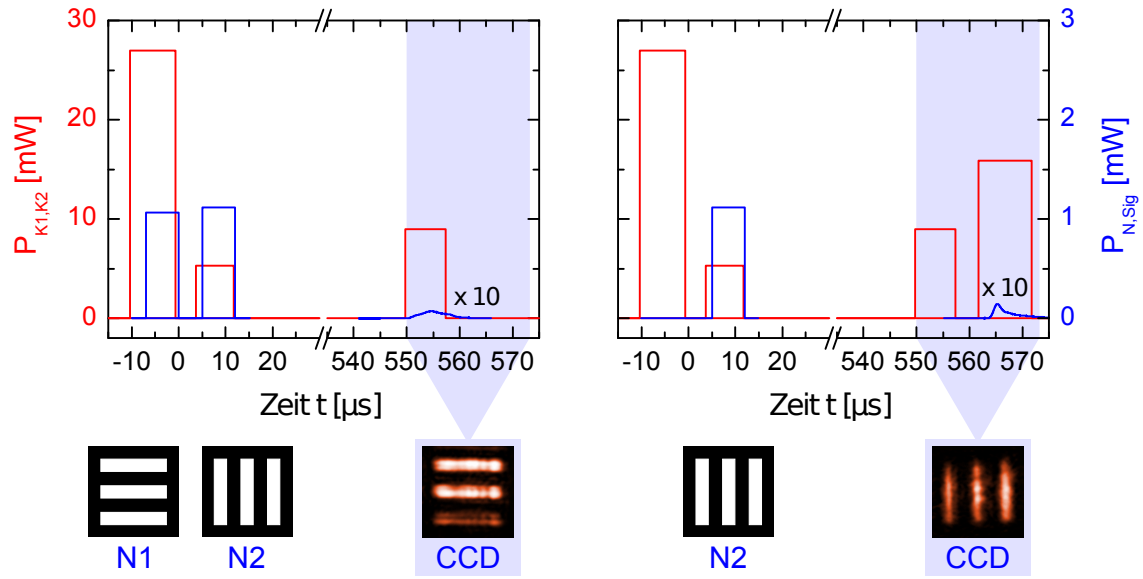


Abbildung 5.9: Experimentelle Pulsfolgen zum selektiven Lesen (links) und selektiven Schreiben (rechts) der Nachweisinformation mittels Winkelmultiplexing in Pr:YSO.

Beim selektiven Schreiben (rechts) wird die komplette Kontrollsequenz genutzt, aber lediglich das vertikal Muster ||| gespeichert. Beim Ausleseprozess wird wie erwartet nur der zweite Signalpuls detektiert. Ein ungewolltes Auslesen durch den ersten Leseimpuls L1 ist aufgrund der vergleichsweise großen Winkelverstimmung von $\Delta\alpha = 1,2^\circ$ unterdrückt. Sowohl Schreib- als auch Leseprozess sind somit winkelselektiv. Andere Kombinationen von Schreib- und Leseimpulsen wurden ebenso getestet und lieferten die erwarteten Ergebnisse [138, 139]

Die hier präsentierten Experimente demonstrieren erstmals das Potential der Kombination von Bildspeicherung und Winkelmultiplexing zur Steigerung der Kapazität eines EIT-getriebenen Speichermediums.

5.4 Kombiniertes Frequenz- und Winkelmultiplexing

Der naheliegendste Schritt zu einer weiteren Erhöhung der Speicherkapazität ist die Kombination von Frequenz- und Winkelmultiplexing. Die hierzu notwendige Präparation des Mediums entspricht der in Kapitel 5.2.1 vorgestellten Pulsfolge zur Erzeugung zweier spektral isolierter Λ -Systeme. Für eine vollständige Beschreibung der hier genutzten Präparationssequenz sei auf [138] verwiesen.

Die Ergebnisse der Lichtspeicherung durch kombiniertes Frequenz- und Winkelmultiplexing sind in Abbildung 5.10 dargestellt. Es werden insgesamt vier Nachweispulse N1...N4 gespeichert. Dabei verläuft die Speicherung von N1 ($\Delta\nu_{N1} = 13\text{ MHz}$) und N2 ($\Delta\nu_{N2} = 15\text{ MHz}$) durch die Schreibpulse S1 ($\Delta\nu_{S1} = 2,8\text{ MHz}$) und S2 ($\Delta\nu_{S1} = 4,8\text{ MHz}$) wie beim reinen Frequenzmultiplexing. Es werden die Grundzustandskohärenzen $\rho_{13}(\alpha_1, \epsilon_2)$ und $\rho_{13}(\alpha_1, \epsilon_2')$ aufgebaut. Anschließend werden die Nachweispulse N3 ($\Delta\nu_{N3} = 13\text{ MHz}$) und N4 ($\Delta\nu_{N4} = 15\text{ MHz}$) durch die Schreibpulse S3 ($\Delta\nu_{S3} = 2,8\text{ MHz}$) und S4 ($\Delta\nu_{S4} = 4,8\text{ MHz}$)

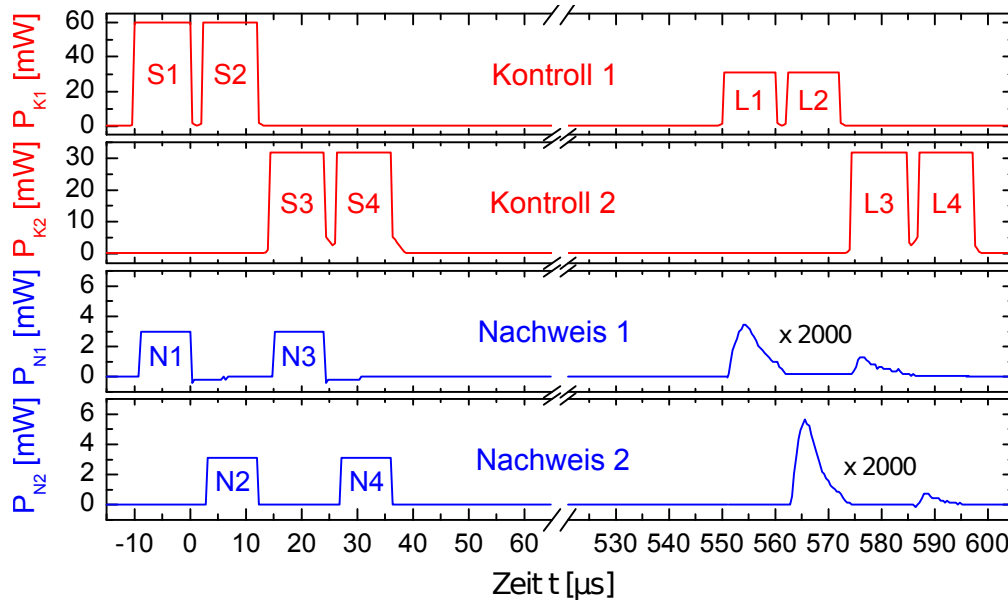


Abbildung 5.10: Simultane Speicherung von vier Lichtpulsen mittels kombiniertem Frequenz- und Winkelmultiplexing in Pr:YSO. Die Rephasierung verläuft analog zu Abbildung 5.6 und ist nicht eingezeichnet.

unter einem anderen Winkel, d.h. per Winkelmultiplexing, gespeichert. Es werden die Grundzustandskohärenzen $\rho_{13}(\alpha_2, \epsilon_2)$ und $\rho_{13}(\alpha_2, \epsilon_2')$ aufgebaut.

Wie zuvor werden HF-Rephasierungspulse (nicht in Abb. 5.10 gezeigt) eingesetzt, um die Speicherzeit zu verlängern. Nach $\Delta t = 550 \mu\text{s}$ werden die Lesepulse L1...L4 eingestrahlt, um die Kohärenzen in die Signalepulse zurück zu transformieren. Die relative Frequenz eines Lesepulses ist dabei identisch zu der des jeweils entsprechenden Schreibpulses. Erwartungsgemäß werden vier Signalepulse detektiert, welche allerdings sehr geringe Effizienzen von $\eta_1 = 0,039\%$, $\eta_2 = 0,051\%$, $\eta_3 = 0,013\%$ und $\eta_4 = 0,008\%$ aufweisen. Dies ist auf die unbeabsichtigte Wechselwirkung einer jeden Kohärenz mit nun drei intensiven Kontrollpulsen vor dem Ausleseprozess zurückzuführen (vgl. Kap. 5.2, 5.3). Des Weiteren fällt auf, dass die ersten beiden Signalepulse deutlich stärker als die Letzteren sind. Dies kann auf den kleineren Winkel α_1 zurückgeführt werden, unter dem N1 und N2 gespeichert wurden. Der Strahlüberlapp ist hier besser, so dass sich eine effizientere Konversion in die Kohärenzen $\rho_{13}(\alpha_1, \epsilon_2)$ bzw. $\rho_{13}(\alpha_1, \epsilon_2')$ ergibt.

Das hier vorgestellte Experiment nutzt erst das Frequenzmultiplexing, um die Pulse N1, N2 und dann das Winkelmultiplexing, um N3 und N4 zu speichern. Experimente mit vertauschter Multiplexing-Reihenfolge sind ebenso denkbar und wurden auch durchgeführt [138]. Diese liefern vergleichbare Speichereffizienzen, welche aufgrund der obigen Argumentation in ihrer Abfolge vertauscht sind.

Wegen der geringen Signalstärke gestaltet sich die Bildspeicherung im Falle des kombinierten Frequenz- und Winkelmultiplexings schwierig [138]. Dennoch konnte anhand der hier vorgestellten Resultate prinzipiell nachgewiesen werden, dass sich die Kombination beider Multiplexing-Techniken zu einer weiteren Erhöhung der Speicherkapazität eignet.

Kapitel 6

Reduktion der Dekohärenz mittels externer Magnetfelder

Ein zentrales Ziel dieser Arbeit ist es, die Speicherzeit in Lichtspeicherexperimenten um mehrere Größenordnungen zu erhöhen, und das Limit der Besetzungsdauer der Hyperfeinzustände von $T_1 \sim 100$ s zu erreichen.

In Kapitel 4 wurde bereits die erfolgreiche Verlängerung der Speicherzeit durch Rephasierung mittels HF-Anregungen diskutiert. Die Speicherzeit war durch die Kohärenzzeit von $500 \mu\text{s}$ beschränkt. Im Gegensatz zur reversiblen Dephasierung strahlender Dipole, handelt es sich bei der Dekohärenz jedoch um stochastische Phasenstörungen. Diese werden in Pr:YSO vorwiegend durch magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zwischen den Pr^{3+} -Ionen und den umgebenden Y^{3+} -Ionen der Wirtsmatrix verursacht. Die Reduktion der dekohärenten Spinfluktuationen, und damit die Verlängerung der Kohärenzzeit, ist durch folgende Maßnahmen möglich:

1. Durch ein externes statisches Magnetfeld \vec{B}_{ext} können die Kernspins ausgerichtet werden. Hierdurch werden schnelle Spin-Rekonfigurationen der Y^{3+} -Ionen reduziert, welche zu fluktuierenden Magnetfeldern an den Orten der Pr^{3+} -Ionen führen. Werden Betrag und Richtung von \vec{B}_{ext} geeignet gewählt, werden die Hyperfeinniveaus der Pr^{3+} -Ionen derart Zeeman-verschoben, dass die Resonanzfrequenzen bestimmter Übergänge in erster Ordnung keine Abhängigkeit von externen Magnetfeldern aufweisen. Dadurch werden die magnetischen Wechselwirkungen zwischen den Pr^{3+} -Ionen und der Wirtsmatrix reduziert. Die Präparation des Systems mittels geeigneter Magnetfelder ist als ZEFOZ-Technik (engl. *Zero first order Zeeman shift*) bekannt. In Kapitel 6.2 wird die Anwendung dieser Technik zur Verlängerung der Kohärenzzeiten in Pr:YSO diskutiert.
2. Ist die Rekonfiguration der Y^{3+} -Kernspins durch die ZEFOZ-Technik ausreichend verlangsamt, kann das resultierende Magnetfeld an den Orten der Pr^{3+} -Ionen über kurze Zeiträume als konstant angenommen werden. Dies ermöglicht die weitere dynamische Kontrolle der Kohärenzen. Bei der dynamischen Dekohärenzkontrolle (DD) werden lange Sequenzen von Rephasierungspulsen mit ausreichend schneller Repetitionsrate genutzt. Hierdurch kann das relevante Quantensystem effektiv von induzierten Phasensprüngen entkoppelt werden. Die Anwendung von DD im ZEFOZ-präparierten Medium zur weiteren Verlängerung der Kohärenzzeiten wird in Kapitel 6.3 vorgestellt.

6.1 Raman-Heterodyn-Spektroskopie

Bei der Lichtspeicherung wird die Nachweisinformation als kohärente Superposition zweier Grundzustands-Hyperfeinniveaus gespeichert. Die Untersuchung der Zeeman-aufgespaltenen Hyperfeinübergänge ist für diese Arbeit daher von besonderer Bedeutung. Dies wird durch die Technik der Raman-Heterodyn-Spektroskopie (RHS) ermöglicht. Die RHS ist eine etablierte Spektroskopiemethode im Bereich der seltenerd-dotierten Festkörper [63, 146–150]. Sie basiert auf der überhöhten Raman-Streuung optischer Strahlung an einer induzierten Kohärenz.

Die Zustände $|1\rangle$ und $|3\rangle$ (s. Abb. 6.1) stellen hierbei die zu untersuchenden Hyperfeinniveaus des elektronischen Grundzustandes 3H_4 im verwendeten Medium $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ dar. Der angeregte Zustand $|2\rangle$ entspricht einem beliebigen Zustand des elektronisch angeregten Niveaus 1D_2 . Durch hochfrequente Magnetfelder der Frequenz $\omega_{\text{HF}} = \omega_{13}$ kann eine kohärente Superposition zwischen den Grundzuständen erzeugt werden. Wird nun ein Pump-Laserfeld der Frequenz ω_{pump} auf dem Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ eingestrahlt, kommt es zur Raman-Streuung an der präparierten Kohärenz ρ_{13} . Es entsteht Stokes-Strahlung der Frequenz $\omega_{\text{st}} = \omega_{\text{pump}} - \omega_{13}$.

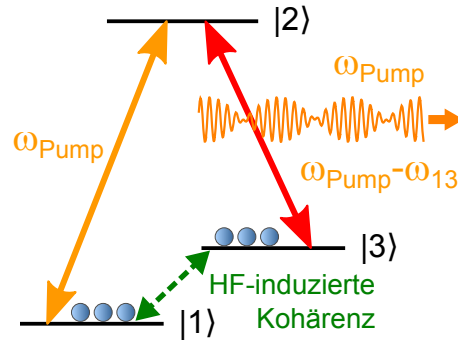


Abbildung 6.1: Kohärente Raman-Streuung im Dreineiveausystem.

Im Gegensatz zur klassischen Raman-Streuung, bei der lediglich ein Lichtfeld genutzt wird, ist das gestreute Licht hier kohärent zum Pumpfeld. Darüber hinaus kommt es aufgrund der hohen Intensität des Laserfeldes zur induzierten Raman-Streuung, so dass das Stokes-Licht das Medium gerichtet verlässt. Das Stokes-Licht kann somit als Schwebung mit dem Pump-Licht detektiert werden (Heterodyn-Detektion s. Kap. 6.1.2). Die Schwebungsfrequenz $|\omega_{\text{pump}} - \omega_{\text{st}}|$ entspricht dabei gerade der Frequenz ω_{13} des zu spektroskopierenden Übergangs $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$.

Es sei angemerkt, dass es durch Kopplung des Pumpfeldes an Zustand $|3\rangle$ und an ein weiteres virtuelles Niveau oberhalb von $|2\rangle$ im Allgemeinen auch zur Erzeugung von Anti-Stokes-Licht der Frequenz $\omega_{\text{AS}} = \omega_{\text{pump}} + \omega_{13}$ kommt. Allerdings ist dessen Intensität aufgrund der nicht-resonanten Kopplung deutlich schwächer. Im realen Medium existieren aber weitere angeregte Niveaus, so dass in Kombination mit der inhomogenen Verbreiterung des optischen Übergangs, meist doch eine Anti-Stokes-Komponente detektiert wird. Diese trägt mit der Schwebungsfrequenz von $|\omega_{\text{pump}} - \omega_{\text{AS}}| = \omega_{13}$ ebenfalls zur Heterodyn-Detektion bei.

6.1.1 Theorie der kohärenten Raman-Streuung

Im Folgenden soll die Stärke des Raman-Signals für den Stokes-Fall ($\omega_{\text{Raman}} < \omega_{\text{pump}}$) in Abhängigkeit der relevanten atomaren sowie Laser- und HF-Parameter berechnet werden. Für eine umfassende Darstellung sei auf [147] verwiesen.

Entscheidend für die Intensität der Stokes-Strahlung ist die Größe der Kohärenz ρ_{23} , welche durch den Streuprozess auf dem optischen Übergang $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$

aufgebaut wird. Diese wirkt sich infolge der mit ihr verknüpften oszillierenden Polarisation $P_{st} = N\mu_{23}\rho_{23}$, mit der Teilchendichte N und dem Übergangsmatrixelement μ_{23} , als Quelle des Stokes-Feldes aus. Aus den Maxwellschen Gleichungen kann dann dessen Intensität abgeleitet werden.

Durch die Liouville-von-Neumann Gleichung (2.16) wird die zeitliche Entwicklung der Besetzungen sowie der Kohärenzen im System beschrieben. Der Wechselwirkungsoperator ist dabei durch die beiden Felder

$$\mathcal{E}_{pump} = \frac{1}{2} \left(\mathcal{E}_0 e^{i(\omega_{pump}t - k_{pump}z)} + c.c. \right) \quad (6.1a)$$

$$\mathcal{B}_{HF} = \frac{1}{2} \left(\mathcal{B}_0 e^{i\omega_{HF}t} + c.c. \right) \quad (6.1b)$$

bestimmt. Die Wellenlänge des HF-Magnetfeldes ist viel länger als die Wechselwirkungslänge im Kristall. Daher wurde in Gleichung (6.1b) der räumliche Phasenfaktor $k_{HF}z$ vernachlässigt. Analog zu (2.4) ergibt sich der Hamiltonoperator \hat{H} des Systems aus den ungestörten Energien $\langle i|\hat{H}_0|j\rangle = \hbar\omega_i\delta_{ij}$ sowie dem Wechselwirkungsoperator $\hat{V} = -\mu_{12}\mathcal{E}_{pump} - \mu_{13}\mathcal{B}_{HF}$:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V} = \hbar \begin{pmatrix} \omega_1 & \Omega_{pump} \cos(\omega_{pump}t) & \Omega_{HF} \cos(\omega_{HF}t) \\ \Omega_{pump}^* \cos(\omega_{pump}t) & \omega_2 & 0 \\ \Omega_{HF}^* \cos(\omega_{HF}t) & 0 & \omega_3 \end{pmatrix} \quad (6.2)$$

Hierbei sind $\Omega_{pump} = -\mu_{12}\mathcal{E}_{pump}/\hbar$ sowie $\Omega_{HF} = -\mu_{13}\mathcal{B}_{HF}/\hbar$ die Rabi-Frequenzen.

Durch Transformation in ein rotierendes Bezugssystem und Anwendung der Drehwellennäherung (RWA, s. Kap. 2.1) erhält man ein System aus sechs gekoppelten Differentialgleichungen, welches sich formal integrieren lässt. Die störungstheoretische Entwicklung bis zur zweiten Ordnung liefert dann im stationären Fall ($t \rightarrow \infty$) einen Beitrag für die gesuchte Kohärenz des Stokes-Übergangs $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ [147, 150]:

$$\rho_{23}^{(2)} = \frac{\Omega_{HF}/2 \Omega_{pump}^*/2 (\rho_{33}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)})}{(i\Delta_{HF} + \gamma_{31})(i(\Delta_{pump} - \Delta_{HF}) - \gamma_{23})} - \frac{\Omega_{HF}/2 \Omega_{pump}^*/2 (\rho_{22}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)})}{(i\Delta_{HF} - \gamma_{21})(i(\Delta_{pump} - \Delta_{HF}) - \gamma_{23})} \quad (6.3)$$

Hierbei wurden die Verstimmungen $\Delta_{HF} = \omega_{31} - \omega_{HF}$, $\Delta_{pump} = \omega_{21} - \omega_{pump}$ sowie die Dekohärenzraten γ_{ij} , welche durch (2.18) definiert sind, genutzt. Der erste Term beschreibt den Kohärenztransfer aus dem HF-Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ nach ρ_{23} , der zweite Term den Übertrag auf dem Laser-Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$. Da die optischen Kohärenzzeiten ($1/\gamma_{21}$) im Allgemeinen deutlich kürzer als die magnetischen ($1/\gamma_{31}$) sind, und beim optischen Übergang über eine viel größere inhomogene Verbreiterung gemittelt werden muss, kann der zweite Term vernachlässigt werden. Im resonanten Fall ($\Delta_{pump, HF} = 0$) ergibt sich nach der Rücktransformation ins stationäre Koordinatensystem:

$$\rho_{23} \propto \mathcal{E}_{pump} \mathcal{B}_{HF} \mu_{12} \mu_{13} (\rho_{33}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)}) e^{i(\omega_{pump} - \omega_{HF})t} \quad (6.4)$$

Die Kohärenz hängt somit linear von der anfänglichen Besetzungsdifferenz des HF-Übergangs ab. Des Weiteren steigt ρ_{23} proportional zu den Feldstärken \mathcal{E}_{pump} ,

\mathcal{B}_{HF} sowie den Dipolübergangsmomenten μ_{12} , μ_{13} und oszilliert mit der Frequenz des Stokes-Übergangs $\omega_{St} = \omega_{Pump} - \omega_{HF}$. Mit der hieraus resultierenden Polarisation $P_{St} = N\mu_{23}\rho_{23}(t) = P_0 e^{i\omega_{St}t}$ lässt sich aus den Maxwellschen Gleichungen die Feldstärke des Stokes-Lichtes ableiten:

$$E_{St} = \frac{L\mu_0\omega_{St}^2}{2ik_{St}} \cdot P_{St} \quad (6.5)$$

Dabei wurde ein nicht-leitendes, nicht-magnetisches und ungeladenes Medium angenommen. L ist die Länge des Mediums und μ_0 die Vakuumpermeabilität. Die Berechnung für den Anti-Stokes-Fall verläuft analog.

6.1.2 Heterodyn-Nachweis

Da das an der Kohärenz ρ_{13} Raman-gestreute Licht ($\mathcal{E}_{Raman} = \mathcal{E}_{St}$ bzw. \mathcal{E}_{AS}) kohärent zur Pump-Strahlung \mathcal{E}_{Pump} ist, kann es mittels Heterodyn-Detektion nachgewiesen werden. Hierzu wird die Intensität der überlagerten Felder gemessen:

$$I_{Ges.} \propto \frac{1}{2} |\mathcal{E}_{Pump} + \mathcal{E}_{Raman}|^2 = \frac{1}{2} \left(\underbrace{|\mathcal{E}_{Pump}|^2}_a + \underbrace{|\mathcal{E}_{Raman}|^2}_b + \underbrace{\mathcal{E}_{Pump}\mathcal{E}_{Raman}^* + \mathcal{E}_{Raman}\mathcal{E}_{Pump}^*}_c \right) \quad (6.6)$$

Die Terme a und b führen lediglich zu einem konstanten Untergrund. Der Interferenzterm c oszilliert hingegen mit der Schwebungsfrequenz $\omega_{Pump} - \omega_{Raman}$, welche im genutzten Medium den Hyperfeinabständen im Bereich von $\omega_{13} \sim 10$ MHz entspricht. Dieses Signal kann mit einer Photodiode ausreichender Bandbreite detektiert werden. Durch Einsetzen von (6.4) und (6.5) ergibt sich die Intensität des Raman-Signals:

$$I_c \propto \mathcal{E}_{Pump}^2 \mathcal{B}_{HF} \mu_{12} \mu_{13} \mu_{23} (\rho_{33}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)}) e^{-i(\omega_{Pump} - \omega_{Raman})t} + c.c. \quad (6.7)$$

Aufgrund der Abhängigkeit von $\mu_{13}\mathcal{B}_{HF}$ ist I_c direkt proportional zur Rabi-Frequenz Ω_{HF} des hochfrequenten Magnetfeldes. Liegt eine Verstimmung vor, so muss allerdings die effektive Rabi-Frequenz $\Omega_{HF}^{eff} = \sqrt{\Omega_{HF}^2 + \Delta_{HF}^2}$ zur Berechnung herangezogen werden. Die Amplitude nimmt dann gemäß $\Omega_{HF}/\Omega_{HF}^{eff}$ mit der Verstimmung ab. Diese Abhängigkeit erlaubt es, die Lage der Hyperfeinniveaus mittels eines festfrequenten Laserfeldes und eines verstimmten HF-Magnetfeldes zu spektroskopieren [147, 150].

Die in diesem Kapitel präsentierten Experimente basieren alle auf der Heterodyn-Detektion von kohärent Raman-gestreutem Licht. Dazu wird ausschließlich der Strahlengang Kontroll 1 verwendet, welcher über den Spiegel S1 auf die Photodiode PD2 (Thorlabs PDA155-EC) geleitet wird (s. Abb. 3.1). Die relative Frequenz des Kontrollstrahls spielt innerhalb der inhomogenen Linienbreite des optischen Übergangs $^3H_4 \leftrightarrow ^1D_2$ keine Rolle, da es immer ein Ensemble gibt, das resonant getrieben wird. Die hochfrequenten Magnetfelder werden, wie in Kapitel 3.5.3 beschrieben, mittels Arbiträr-Funktionsgeneratoren erzeugt.

Für die hier durchgeführten Experimente ist die präzise Bestimmung der Amplitude des Raman-Signals wichtig. Da das Raman-gestreute Licht vom viel intensiveren Pumplicht überlagert wird, und außerdem Informationen über Amplitude und Phase der untersuchten Kohärenz trägt, bietet sich eine phasenempfindliche Detektion mittels eines Lock-In-Verstärkers an. Dieser demoduliert das Photodiodensignal mittels des Referenzsignals des Funktionsgenerators und gibt Spannungen proportional zur Amplitude und Phase des Schwebungssignals aus. Diese werden mittels einer A/D-Wandlerkarte (NI PCIe 6363) erfasst und im Messrechner verarbeitet. Einen detaillierten Überblick über die Signalerfassung mittels des hier genutzten Lock-In-Verstärkers (Zurich Instruments ZI HF2LI) ist in [151] zu finden.

6.1.3 Spektroskopie der Zeeman-Aufspaltung

Die RHS findet parallel in mehreren Ensembles des optisch inhomogen verbreiterten Pump-Übergangs ($\Gamma_{inhom}^{opt} \approx 7$ GHz) statt. Da die Streuprozesse aber jeweils zum Pumplicht kohärente Stokes- bzw. Anti-Stokes-Felder mit identischen Frequenzen erzeugen, ist die Auflösung der RHS nicht durch Γ_{inhom}^{opt} limitiert. Auch Frequenzfluktuationen des Lasers $\Delta\nu_{Flukt.}$ wirken sich aufgrund der kohärenten Streuung nicht auf das Schwebungssignal (6.7) aus. Bei hinreichend langsamer Verstimmung der Hochfrequenz ist die Genauigkeit der RHS daher lediglich durch die inhomogene Verbreiterung der Hyperfeinübergänge limitiert, welche im magnetfeldfreien Fall bei ca. $\Gamma_{inhom}^{HFS} \sim 30$ kHz liegt (s. Kap. 1.4). Die RHS ermöglicht daher eine einfache, direkte und hochauflösende Untersuchung der HFS, welche mit rein optischen Methoden kaum zu erreichen ist.

Abbildung 6.2 zeigt experimentell ermittelte Raman-Heterodyn-Spektren der HFS des elektronischen Grundzustandes 3H_4 in Abhängigkeit externer statischer Magnetfelder. Dazu wurde das supraleitende Hochfeldspulensystem (s. Kap. 3.5.2) genutzt. Das Magnetfeld wurde für jeweils eine Raumrichtung von 0 bis 1000 G in 10 G-Schritten erhöht, während die beiden anderen räumlichen Komponenten auf 0 G festgelegt wurden. Die Hochfrequenz wurde während einer Sekunde von 1 bis 20 MHz durchgestimmt. Pro Frequenzintervall wurden 2500 Datenpunkte aufgenommen.

Für $B = 0$ werden die zwei entarteten Hyperfeinübergänge $|\pm \frac{1}{2}\rangle \leftrightarrow |\pm \frac{3}{2}\rangle$ und $|\pm \frac{3}{2}\rangle \leftrightarrow |\pm \frac{5}{2}\rangle$ detektiert, deren Resonanzen bei $\Delta\nu_{HF} = 10,2$ MHz und $\Delta\nu_{HF} = 17,3$ MHz liegen (s. Kap. 1.3.2.1). Wird das externe Magnetfeld angelegt, kommt es aufgrund des Zeeman-Effekts zur Aufspaltung der zuvor entarteten Niveaus in vier Spektrallinien. Bei hohen Feldstärken ist deutlich der nichtlineare Charakter der Zeeman-Verschiebung zu erkennen. Es treten wiederholt Bereiche auf, bei denen sich Spektrallinien einander annähern, aber nicht kreuzen. Diese Konfigurationen sind für die späteren Experimente zur Reduzierung von dekohärenten Einflüssen von besonderem Interesse (s. Kap. 6.2).

Neben der nichtlinearen Zeeman-Verschiebung ist bei hohen Feldstärken auch eine beginnende Aufspaltung der Spektrallinien aufgrund der magnetischen Lagen A und B erkennbar (s. Kap. 1.3.2.2). Dies deutet darauf hin, dass die C_2 -Achse des Kristalls nicht perfekt kollinear zur z -Achse des Magnetfeldes ausgerichtet ist. Das

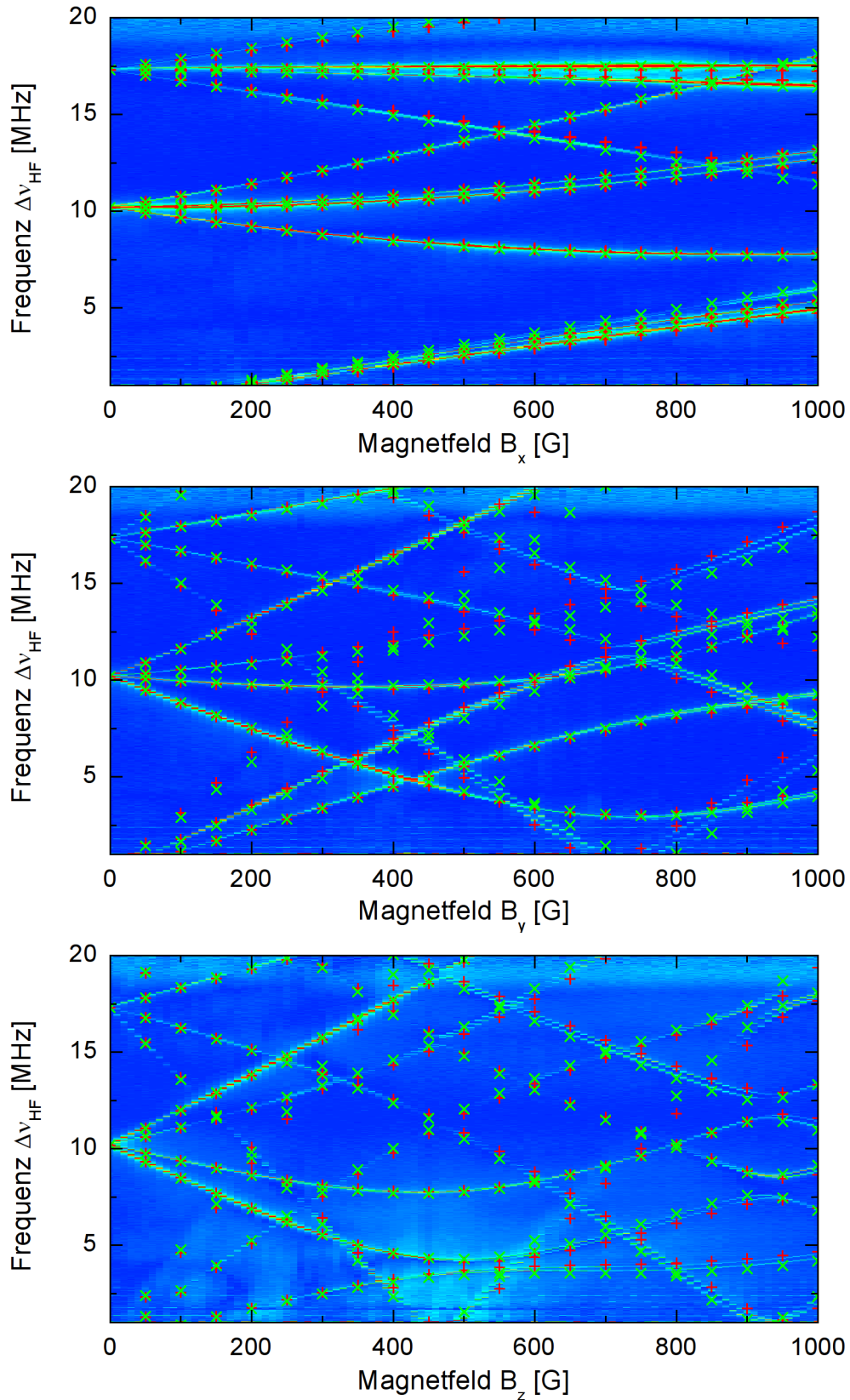


Abbildung 6.2: Raman-Heterodyn-Spektren der Zeeman-aufgespaltenen HFS des elektronischen Grundzustandes 3H_4 . Es wurde jeweils eine Feldkomponente variiert, während die anderen Komponenten auf konstant 0 G gehalten wurden. Die experimentellen Daten (Hintergrund) sind mit berechneten Punkten (+: magn. Lage A, x: magn. Lage B) überlagert.

Magnetfeld bricht somit die Kristallsymmetrie beider magnetischer Einbaulagen.

Das hier genutzte Koordinatensystem ist in Abbildung 6.3 dargestellt und wurde so gewählt, dass es mit den Arbeiten von *Lovrić et al.* zur spektroskopischen Bestimmung der Quadrupol- und Zeeman-Parameter der HFS übereinstimmt [50, 152]. Die Orientierung unterscheidet sich von vorigen Arbeiten, bei denen \vec{B}_y möglichst parallel zur C_2 -Achse gewählt wurde [58, 122, 151].

Auf Basis der in [50] bestimmten spektroskopischen Parameter (s. auch Anhang A) und der in Kapitel 1.3.2.2 eingeführten theoretischen Beschreibung, kann die energetische Lage der Hyperfeinniveaus berechnet werden. Dies wurde exemplarisch für 20 Feldstärken durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.2 für die magnetische Lage A (+) und für die magnetische Lage B (x) den experimentellen Spektren überlagert. Trotz des komplizierten, nichtlinearen Verlaufs der Zeeman-Aufspaltung wird eine außerordentlich gute Übereinstimmung zwischen Experiment und berechneten Daten beobachtet. Selbst die geringe Verzweigung der magnetischen Lagen bei hohen Feldstärken wird korrekt wiedergegeben.

Neben dem hier spektroskopierten Grundzustand können ebenso die Hyperfeinübergänge innerhalb des angeregten Zustandes 1D_2 untersucht werden. Entsprechende Experimente wurden durchgeführt und stimmen ebenfalls sehr gut mit der Theorie überein [122].

Die hier präsentierten Resultate stellen die bislang hochauflösendste Spektroskopie der magnetfeldabhängigen HFS von $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ dar. Die RHS wird später dazu genutzt optimale Feldkonfigurationen zur Verlängerung von Kohärenzzeiten zu verifizieren (s. Kap. 6.2.5).

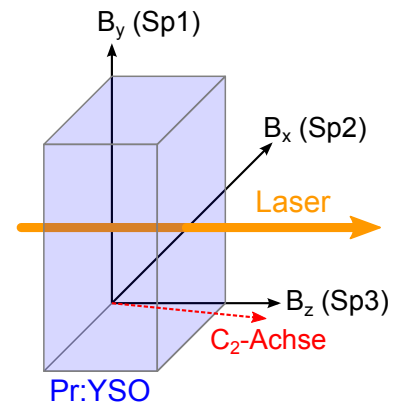


Abbildung 6.3: Orientierung des Koordinatensystems (Sp: Spule)

6.2 Reduktion der Dekohärenz mittels externer Magnetfelder

Ziel der in diesem Abschnitt präsentierten Experimente ist der Erhöhung der Kohärenzzeit mittels externer, statischer Magnetfelder. Diese sollen die Pr^{3+} -Ionen unempfindlicher gegenüber äußeren Spinfluktuationen machen. Zwar lassen sich solche ZEFOZ-Konfigurationen theoretisch berechnen [50, 58], allerdings führen Untergrundfelder und Verkippen des Kristalls bezüglich der Spulen zu nicht vernachlässigbaren Abweichungen [152]. Eine experimentelle Optimierung des Magnetfeldes zur Steigerung der Kohärenzzeit ist daher zwingend erforderlich.

Da die HFS der Pr^{3+} -Ionen unter Einfluss eines externen Magnetfeldes deutlich komplexer ist als im feldfreien Fall, kann die Kohärenzzeit nicht mittels der in Kapitel 4.3 vorgestellten Lichtspeicherexperimente auf Basis von EIT gemessen werden. Hierzu wäre eine Anpassung der Präparationssequenz notwendig. Dies ist allerdings aufgrund der deutlich erhöhten Anzahl möglicher Übergänge

(2×36 Übergänge für $B \neq 0$ statt nur 9 Übergänge für $B = 0$) und der im Allgemeinen unbekannten Oszillatorstärken analytisch kaum möglich. Zur Charakterisierung der Kohärenzeigenschaften des Mediums wird daher eine Technik benötigt, welche nicht auf ein kompliziertes Präparationsverfahren angewiesen ist. Dies leistet die Methode der Spinechos, welche im Rahmen dieser Arbeit implementiert wurde und nun vorgestellt wird.

6.2.1 Spinechos

Der prinzipielle Ablauf eines Zwei-Puls-Spinecho-Experiments ist in Abbildung 6.4 dargestellt. Im ersten Schritt wird über eine Zeitdauer von mehreren Millisekunden ein festfrequenter Laserpuls ($\Delta\nu_{\text{pump}} = 0$ MHz) eingestrahlt. Durch optisches Pumpen werden so in mehreren Ensembles die Grundzustands-Hyperfeinniveaus entleert (s. auch Abb. 4.2 links). Betrachtet man lediglich eines der adressierten Ensembles, so lässt sich die Besetzungsdifferenz auf dem zu untersuchenden Hyperfeinübergang im Bild der Blochkugel [153] als nach unten gerichteter Blochvektor interpretieren (s. Abb. 6.4 unten). Im nächsten Schritt wird durch einen resonanten HF-Puls der Pulsfläche $\mathcal{A} = \frac{\pi}{2}$ die Besetzung in eine kohärente Superposition beider Hyperfeinniveaus überführt. Auf der Blochkugel entspricht dies einer Rotation des Vektors um $\frac{\pi}{2}$ in die Äquatorialebene. Da die Bandbreite der HF-Pulse ($\tau_\pi \simeq 10 \mu\text{s}$) die inhomogene Verbreiterung des Hyperfeinübergangs ($\Gamma_{\text{inhom}}^{\text{HFS}} \sim 30 \text{ kHz}$) deutlich übertrifft, sind an diesem Prozess Pr^{3+} -Ionen mit leicht unterschiedlichen Hyperfein-Übergangsfrequenzen beteiligt. Dies führt zur bereits in Kapitel 4.2 diskutierten Dephasierung der einzelnen Kohärenzen auf einer Zeitskala von $T_{\text{deph}} \approx 10 \mu\text{s}$. Die detektierbare Amplitude der Nettokohärenz sinkt. Der Dephasierungsprozess kann, wie in Kapitel 4.3 demonstriert, durch einen HF- π -Puls invertiert werden. Wird dieser nach einer Zeitdauer τ nach dem $\frac{\pi}{2}$ -Puls eingestrahlt, kommt es nach $\Delta t = 2\tau$ zu einer Refokussierung der Einzelkohärenzen. Dadurch entsteht wieder eine hohe Nettokohärenz – das sogenannte Spinecho. Die Detektion des Spinechos erfolgt analog zum vorherigen Abschnitt durch kohärente

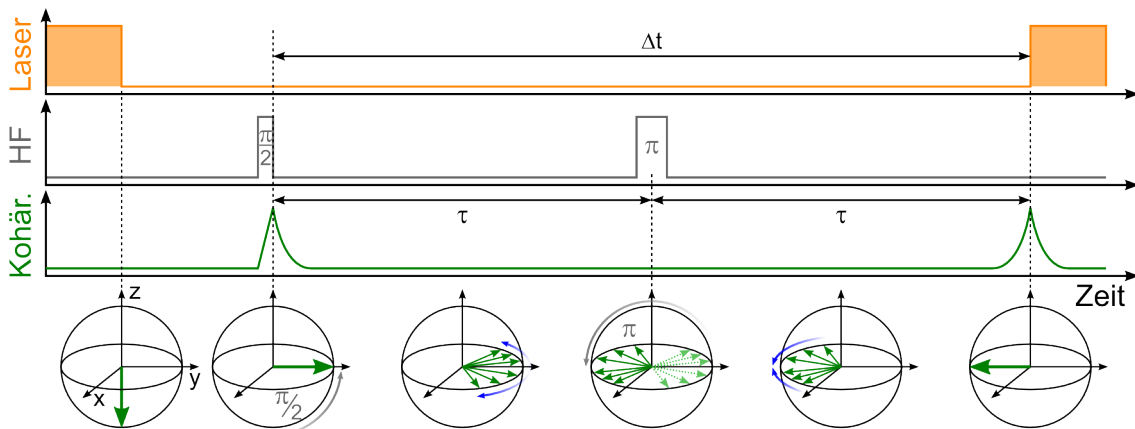


Abbildung 6.4: Schematische Darstellung einer Zweipuls-Spinecho-Sequenz. Obere Reihen: Optische Pulssequenz, HF-Sequenz, Amplitude der erzeugten Netto-Kohärenz. Untere Reihe: Dynamik der einzelnen Kohärenzen auf der Blochkugel [153].

Raman-Streuung mit einem Laserpuls.

Im Gegensatz zur Lichtspeicherung wird also bei der Spinecho-Technik die initiale Kohärenz nicht auf optischem Wege in einem einzigen Ensemble, sondern mittels HF-Anregung in neun Ensembles (für $B = 0$) bzw. 72 Ensembles (für $B \neq 0$) simultan erzeugt. Da die HF-Rephasierung und die Detektion des Echos mittels der kohärenten Raman-Streuung ebenfalls in allen Ensembles parallel stattfindet, erfordert die Spinecho-Technik keine komplizierte Präparation von spektral isolierten Ensembles wie im Falle von EIT. Das hier vorgestellte Verfahren eignet sich somit ideal, um auf einfachem und direktem Wege den Einfluss externer Magnetfelder auf die Kohärenzeigenschaften der HFS in Pr:YSO zu untersuchen.

6.2.2 Dekohärenz in Pr:YSO

Der Wirtskristall Y_2SiO_5 ist ein Isolator hoher Güte. Elektrische Feldfluktuationen aufgrund freier Ladungsträger tragen daher nur unwesentlich zur Dekohärenz der Hyperfeinniveaus der dotierten Pr^{3+} -Ionen bei [154]. Die Dotierungsionen besitzen allerdings infolge des Kristallfeldes ein permanentes elektrisches Dipolmoment, welches zudem von deren Anregungszustand abhängt. Wird dieser durch ein externes optisches Feld geändert, kommt es aufgrund von Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zur Änderung der Resonanzfrequenzen der umgebenden Pr^{3+} -Ionen. Dieser Effekt kann als optisch „induzierte“ Dekohärenz interpretiert werden und ist auch als instantane spektrale Diffusion bekannt [155, 156].

Ohne externe Anregungen sind vor allem magnetische Wechselwirkungen zwischen den Pr^{3+} -Ionen und den umgebenden Y^{3+} -Ionen für die Dekohärenz verantwortlich. Bei $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ handelt es sich allerdings um ein intrinsisch rauscharmes System. Hierzu tragen sowohl die elektronische Abschirmung der $4f$ -Schale (s. Kap. 1.1) als auch die geringen kernmagnetischen Momente des Wirtskristalls bei [46].

Das Magnetfeld am Ort eines Pr^{3+} -Ions durch das Nächste-Nachbar- Pr^{3+} -Ion beträgt $B_{pr} = 1,4 \text{ G}$. Dies übersteigt das entsprechende Feld der Y^{3+} -Ionen von $B_Y = 0,011 \text{ G}$ um mehrere Größenordnungen [157]. Bei Abwesenheit starker externer Felder definieren die Pr^{3+} -Ionen daher eine lokale Quantisierungsachse, an der sich die direkt benachbarten Wirtionen ausrichten. Dieser Kern ist in Abbildung 6.5 grau hinterlegt. Infolge des Zeeman-Effekts kommt es dabei zu einer Verschiebung der Energieniveaus der Ionen im Kern, wodurch diese von der weiteren Umgebung entkoppelt werden. Dieser Effekt trägt ebenfalls zu einer Reduktion von dekohärenten Einflüssen auf die Pr^{3+} -Ionen bei und wird in der Literatur daher als „frozen core“ bezeichnet [158, 159].

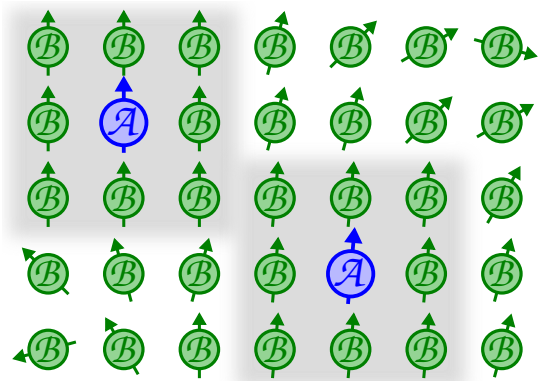


Abbildung 6.5: Skizze zum Spingittermodell. ($A \equiv \text{Pr}^{3+}$; $B \equiv \text{Y}^{3+}$; grau: „frozen core“)

Der überwiegende Beitrag zur Dekohärenz entsteht durch magnetische Spin-

fluktuationen und Spin-Austauschprozesse der umgebenden Y^{3+} -Ionen untereinander. Die Austauschrate für zueinander resonante Y^{3+} -Ionen liegt in der Größenordnung von einigen 10 Hz [65]. Hieraus resultieren zeitlich variierende Magnetfelder an den Orten der Pr^{3+} -Ionen, welche über den Zeeman-Effekt zu fluktuierenden Energieniveaus und somit zur irreversiblen Abnahme einer präparierten Kohärenz führen. Die mathematische Beschreibung der Zerfallsdynamik kann anhand eines Spingittermodells (s. Abb. 6.5) erfolgen, welches im Folgenden kurz motiviert wird. Für eine ausführliche Betrachtung sei auf [160, 161] verwiesen.

Es wird angenommen, dass die relevanten \mathcal{A} -Spins (hier: Pr^{3+}) in ein Gitter von fluktuierenden \mathcal{B} -Spins (hier: Y^{3+}) eingebettet sind. Die Dotierungskonzentration der \mathcal{A} -Spins sei hinreichend gering, so dass nur \mathcal{A} - \mathcal{B} -Dipol-Wechselwirkungen eine Rolle spielen. Die Spinfluktuationen führen gemäß $\omega(t) = \omega_0 + \Delta\omega(t)$ zur individuellen Verschiebung der \mathcal{A} -Übergangsfrequenzen. Die Spinechoamplitude E als Maß für die Gesamtkohärenz ergibt sich nach einer Verzögerung von $\Delta t = 2\tau$ als zeitliche Mittelung über die Frequenzfluktuationen bei anschließender Mittelung über das gesamte Gitter:

$$E(2\tau) \sim \left\langle \left\langle \exp \{i\Delta\omega(2\tau)\} \right\rangle_{\text{Zeit}} \right\rangle_{\text{Gitter}} \quad (6.8)$$

Um die Mittelungen durchzuführen, nahmen *Herzog et al.* an, dass die Frequenzverschiebungen $\Delta\omega$ aufgrund der ständigen Rekonfiguration des \mathcal{B} -Gitters einer zeitlich invarianten Gaußverteilung folgen [161]. Diese wird durch den Rekonfigurationsparameter R beschrieben, welcher invers proportional zur Lebensdauer einer \mathcal{B} -Gitterkonfiguration ist. Des Weiteren wird angenommen, dass der Einfluss der einzelnen \mathcal{B} -Spin-Umgebungen auf die jeweiligen \mathcal{A} -Spins identisch ist, so dass aus (6.8)

$$E(2\tau) = E_0 \exp \left(- \left(\frac{\gamma_{\mathcal{A}}}{R} \right)^2 [R\tau - 1 + (1 + R\tau)e^{-2R\tau}] \right) \quad (6.9)$$

folgt. Hierbei ist E_0 die maximale Echoamplitude und $\gamma_{\mathcal{A}}$ das gyromagnetische Verhältnis eines \mathcal{A} -Spins. Fluktuieren die \mathcal{B} -Spins im Vergleich zur Zeitskala τ des Spinechos sehr schnell, so gilt $R\tau \gg 1$, und (6.9) vereinfacht sich zu:

$$E(2\tau) \approx E_0 \exp \left(- \left(\frac{\gamma_{\mathcal{A}}^2 \tau}{R} \right) \right) \quad (6.10)$$

Sind die Fluktuationen der \mathcal{B} -Spins hingegen vergleichsweise langsam ($R\tau \ll 1$), beeinflussen während Δt nur wenige unterschiedliche \mathcal{B} -Gitterkonfigurationen die \mathcal{A} -Spins. In diesem Fall können die Frequenzverschiebungen $\Delta\omega$ nicht mehr als Gaußverteilt angenommen werden. Stattdessen muss eine Lorentzverteilung angesetzt werden [162]. Hieraus folgt [160]:

$$E(2\tau) = E_0 \exp \left(- \left(\frac{2\tau}{T_M} \right)^2 \right) \quad (6.11)$$

Der nichtlineare Charakters des Kohärenzzerfalls wird dabei durch die Zeitkonstante T_M des Phasengedächtnisses und nicht durch die Kohärenzzeit T_2 beschrieben [162]. Zwar ist T_M aufgrund der vom Blochbild abweichenden, stochastischen

Dynamik prinzipiell von T_2 verschieden, dennoch können diese zur groben Abschätzung der Zeitskalen in nullter Näherung gleich gesetzt werden [162]. Im Rahmen dieser Arbeit ist die Kohärenzzeit T_2 einheitlich als Zeitdauer definiert, nach der die anfängliche Signalamplitude auf den $1/e$ -Anteil gesunken ist.

6.2.3 Messung der Kohärenzzeit ohne externe Magnetfelder

Die prinzipielle Eignung der Spinecho-Technik zur Bestimmung der Kohärenzzeit T_2 wird zuerst für den Fall ohne bzw. bei schwachen externen statischen Magnetfeldern untersucht. Eine entsprechende Messung des Zerfalls einer zwischen den Grundzuständen $|\pm \frac{1}{2}\rangle$ und $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ ($\Delta\nu_{HF} = 10,2 \text{ MHz}$) präparierten Kohärenz ist in Abbildung 6.6 links dargestellt. Abhängig von der äußeren Situation werden wie im Falle der Lichtspeicherung (s. Abb. 6.6 rechts) zwei charakteristische Zerfalldynamiken beobachtet. Liegt ein schwaches Hintergrundfeld vor, kommt es über die Echoverzögerung 2τ hinweg zu der bereits in Kapitel 4.3 beobachteten zeitlichen Oszillation der Signalamplitude ($-\circ-$). Diese ist bei der Spinechotechnik allerdings weniger prägnant ausgeprägt. Gründe hierfür sind einerseits die im Falle der Spinechos deutlich höhere Anzahl von inhomogen verbreiterten Ensembles bzw. Phasenkomponenten, welche zur Interferenz beitragen. Andererseits wird im Gegensatz zur Lichtspeicherung nicht Strahlengang Nachweis 1, sondern Kontrollstrahl 1 genutzt, welcher einen deutlich größeren Raumbereich innerhalb des Kristalls adressiert. Im Vergleich zur Lichtspeicherung wirken sich Inhomogenitäten von Hintergrundfeld als auch von initialem und Rephasierungs-HF-Puls stärker aus. Komplexere Interferenzeffekte und eine schwächer ausgeprägte DZS sind die Folge.

Bei reduziertem Hintergrundfeld ist die Zeeman-Aufspaltung der Hyperfein-niveaus minimiert und die DZS wird unterdrückt (s. auch Kap. 4.3). Im Falle der Lichtspeicherung konnte dies mittels externer Kompensationsfelder er-

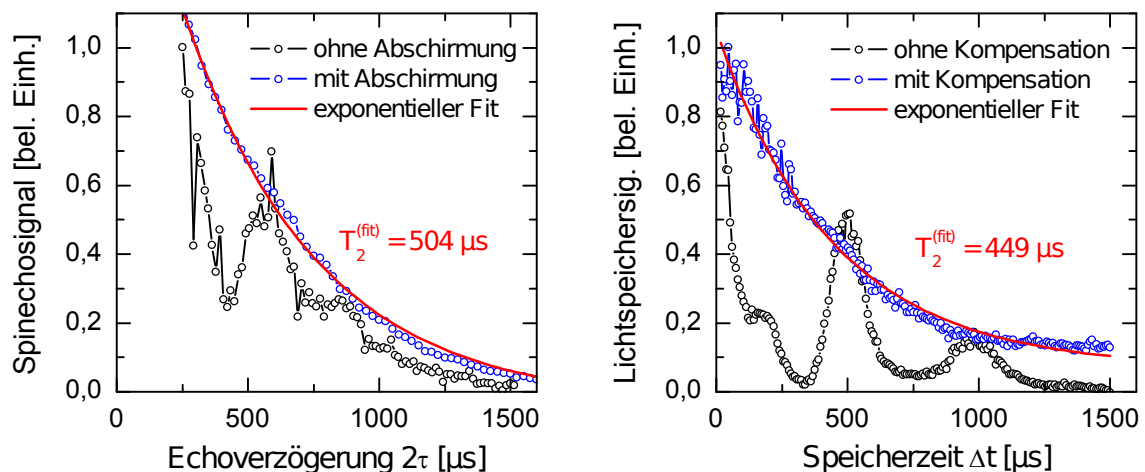


Abbildung 6.6: Vergleich der Messungen des Kohärenzzerfalls mittels Spinechos (links) und Lichtspeicherung (rechts). Messung mit Hintergrundfeldern ($-\circ-$), mit abgeschirmten bzw. kompensierten Feldern ($-\circ-$) sowie exponentielle Regressionen ($-$).

reicht werden. Bei den Spinecho-Experimenten wurde stattdessen eine Mu-Metall-Abschirmung um den Kryostaten angebracht. Der ermittelte Kohärenzzerfall für diese vergleichbaren Szenarien ist ebenfalls in Abbildung 6.6 dargestellt (—○—). Es ergeben sich exponentielle Zerfälle, welche jeweils sehr gut mit entsprechenden Regressionen (—) übereinstimmen. Die durch Spinechos ermittelte Kohärenzzeit von $T_2 = 504 \mu\text{s}$ stimmt gut mit dem durch die Lichtspeicherung vermessenen Kohärenzzerfall ($T_2 = 449 \mu\text{s}$) bzw. den publizierten Werten im Bereich von $T_2 \approx 500 \mu\text{s}$ [68] überein. Die Spinecho-Technik eignet sich somit gut zur einfachen und direkten Charakterisierung von Kohärenzzerfällen innerhalb der HFS von Pr:YSO.

6.2.4 Einfluss externer Magnetfelder auf die Kohärenzzeit

Wie in Kapitel 6.2.2 beschrieben, entsteht der überwiegende Beitrag zur Dekohärenz innerhalb der HFS der Pr^{3+} -Ionen durch magnetische Spinfluktuationen der umgebenden Y^{3+} -Ionen. Die damit einhergehende schwankende Zeeman-Verschiebung der Pr^{3+} -HFS-Niveaus führt zum irreversiblen Verlust der Phaseninformation präparierter Kohärenzen. Zwar kann die Schwankung der Spins durch Anlegen externer Magnetfelder teilweise reduziert werden, dennoch lässt sich der Effekt aufgrund phononischer Anregungen nie vollständig unterdrücken. Daher wird hier eine Strategie verfolgt, welche die Pr^{3+} -Ionen zusätzlich unempfindlicher gegenüber äußeren Einflüssen machen soll.

Für bestimmte Magnetfelder wohldefinierter Stärke und Richtung existieren Niveaus innerhalb der Pr^{3+} -HFS, welche in erster Näherung identische Zeeman-Verschiebungen aufweisen. Im Spektrum äußert sich dies als verschwindender Gradient des entsprechenden Übergangs ($\partial\nu/\partial B = 0$) und wird beispielsweise beobachtet, wenn sich zwei Niveaus einander annähern, aber nicht überkreuzen. Diese ZEFOZ-Punkte spielen für diese Arbeit eine entscheidende Rolle. Die Lage der entsprechenden Hyperfeinniveaus wird an den ZEFOZ-Punkten nicht nur unabhängig von äußeren, sondern insbesondere auch gegenüber internen Feldern. Das durch die Y^{3+} -Ionen verursachte, fluktuierende Magnetfeld wirkt sich also nicht mehr so stark auf die Pr^{3+} -Ionen aus. Dabei wird der Grad der Entkopplung durch die Krümmung des Zeeman-verschobenen Übergangs bestimmt. Je flacher der Verlauf ist ($\partial^2\nu/\partial B^2 \approx 0$), desto weniger wirken sich variierende Magnetfelder aus. Mittels der ZEFOZ-Technik konnten bereits in einer Reihe von Medien teilweise dramatische Erhöhungen der Kohärenzzeit beobachtet werden [65, 163–165].

Ein erster Nachweis des Einflusses externer Magnetfelder auf die Kohärenzeigenschaften der Pr^{3+} -Ionen erfolgte mit vergleichsweise schwachen Magnetfeldern im Bereich von 40 G. Diese wurden mittels der supraleitenden Niederfeldspulen erzeugt, welche in diesem Feldbereich eine sehr gute Auflösung und ein geringes Rauschen aufweisen (s. Kap. 3.5.2). Abbildung 6.7 zeigt die Zeeman-Aufspaltung des Grundzustands-Hyperfeinübergangs $|\pm \frac{1}{2}\rangle \leftrightarrow |\pm \frac{3}{2}\rangle$, welche mittels RHS ermittelt wurde. Im linken Bereich wurde lediglich das Magnetfeld in y -Richtung von $B_y = 0$ bis 40 G erhöht ($B_x = B_z = 0$ G). Wie erwartet ergibt sich bei zunehmendem Feld eine Aufspaltung des anfänglich entarteten Übergangs in die vier einzelnen Übergänge $(|+\frac{1}{2}\rangle, |-\frac{1}{2}\rangle) \rightleftharpoons (|+\frac{3}{2}\rangle, |-\frac{3}{2}\rangle)$. Wird nun die y -Komponente konstant

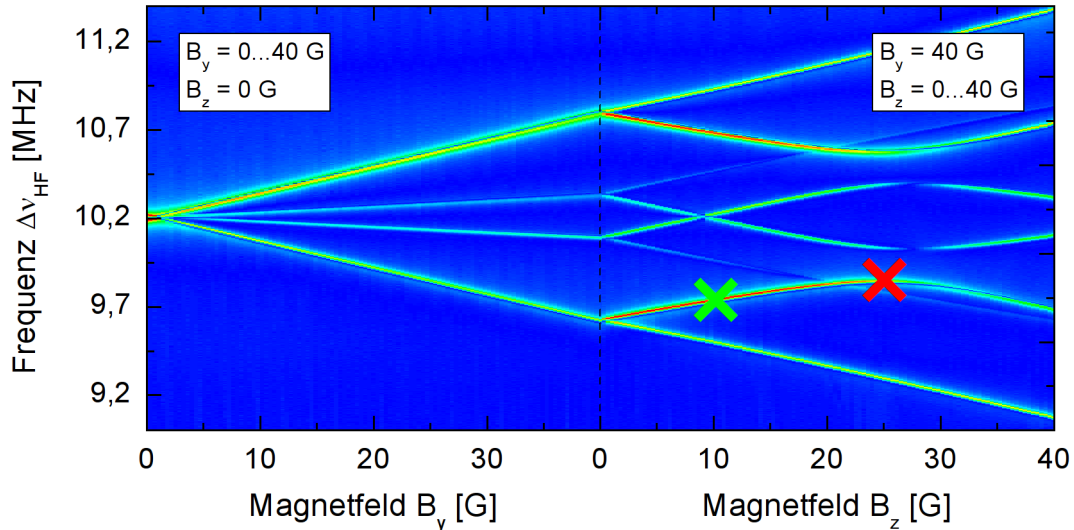


Abbildung 6.7: Raman-Heterodyn-Spektrum des Zeeman-aufgespaltenen Hyperfeinübergangs $|^3H_4, \pm\frac{1}{2}\rangle \leftrightarrow |^3H_4, \pm\frac{3}{2}\rangle$. Im linken Teil des Graphen wird B_y variiert ($B_x = B_z = 0$ G), im rechten Teil des Graphen ändert sich B_z wobei $B_x = 0$ G und $B_y = 40$ G gilt. Die beiden Kreuze (x, x) markieren später untersuchte Feldkonfigurationen.

auf 40 G gehalten und B_z variiert (rechte Bildhälfte), kommt es aufgrund der unterschiedlichen Orientierung von Pr^{3+} -Ionen der magnetischen Lage A und B zur weiteren Aufspaltung.

Neben Bereichen mit nahezu linearer Zeeman-Verschiebung (x) werden auch Verläufe mit extremalem Verhalten, d.h. ZEFOZ-Punkte (x) beobachtet. Die Kohärenzeigenschaften an den exemplarischen Konfigurationen $\vec{B} = (0; 40; 10)$ G und $\vec{B} = (0; 40; 25)$ G können nun mittels Spinechos untersucht werden. Abbildung 6.8 zeigt einen Vergleich des gemessenen Kohärenzzerfalls für drei verschiedene Feldkonfigurationen. Grüner und roter Verlauf korrelieren dabei mit den in Abbildung 6.7 farbig markierten Punkten. Der blaue Verlauf ergibt sich bei einem weiteren Magnetfeld und wird anschließend diskutiert.

Unter dem Einfluss externer Magnetfelder ergibt sich eine deutliche Erhöhung der Kohärenzlebensdauer in den Bereich von $T_2 \gtrsim 10$ ms. Im Vergleich zum Kohärenzzerfall ohne externe Felder (s. Abb. 6.6) mit $T_2 \approx 500 \mu\text{s}$ entspricht dies einer Steigerung um mindestens einen Faktor 20. Aufgrund der durch die Magnetfelder reduzierten Rekonfigurationsrate des Y^{3+} -Spingitters ($R\tau \ll 1$) erfolgt der Kohärenzzerfall nun nicht mehr exponentiell, sondern gemäß (6.10) nach dem Modell des Phasengedächtnisses. Entsprechende Regressionen stimmen sehr gut mit den experimentell ermittelten Daten überein und liefern Dekohärenzzeiten von $T_2 = 11,0 \pm 0,2$ ms für $\vec{B} = (0; 40; 10)$ G (—) und $T_2 = 16,5 \pm 0,1$ ms für $\vec{B} = (0; 40; 25)$ G (—). Des Weiteren fällt auf, dass es bei den hier beobachteten Zerfällen zu keinerlei Oszillation des Spinechosignals über die Echoverzögerung 2τ hinweg kommt. Der Grund hierfür liegt in der vollständigen Aufhebung der Entartung aller Hyperfeinniveaus durch das Magnetfeld. Es wird folglich nur jeweils ein einzelner Übergang adressiert, so dass es zu keinerlei unterschiedlichen Kohärenzevolutionen, respektive zur DZS kommen kann (s. auch Kap. 4.3).

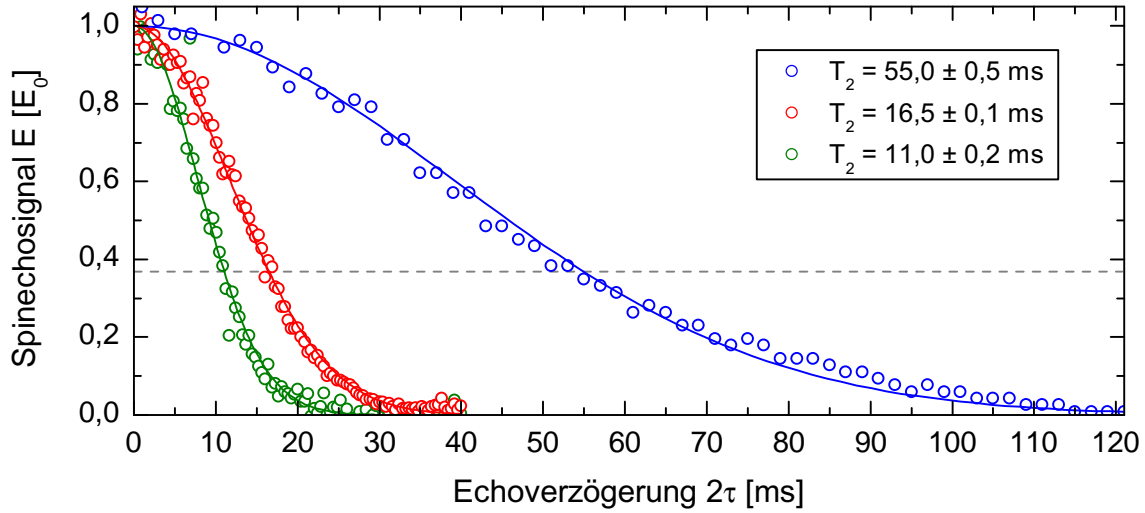


Abbildung 6.8: Vergleich des Kohärenzzerfalls für die in Abbildung 6.7 markierten Feldkonfigurationen (\circ , \circ) sowie für den in [65] dokumentierten ZEFOZ-Punkt (\circ). Durchgezogene Linien entsprechen Regressionen gemäß dem Modell des Phasengedächtnisses.

Die im Vergleich zu $T_2 = 11$ ms um etwa die Hälfte größere Kohärenzzeit auf der in Abbildung 6.7 rot markierten Konfiguration $\vec{B} = (0; 40; 25)$ G (\times), ist auf den ZEFOZ-Charakter des entsprechenden Übergangs zurückzuführen. Diese Steigerung erscheint allerdings angesichts des großen Potentials der Technik [65] vergleichsweise gering. Die Ursache hierfür ist die extremale Abhängigkeit der Zeeman-Verschiebung in lediglich der z -Raumrichtung. Erst bei deutlich größeren Feldstärken im Bereich von 1000 G existieren Hyperfeinübergänge, welche in allen drei Raumrichtungen ZEFOZ-Verhalten aufweisen.

Ein solche 3D-ZEFOZ-Konfiguration wurde von *Fraval et al.* in Pr:YSO ermittelt [65]. Es handelt sich dabei ebenfalls um einen Übergang, welcher aus dem entarteten Hyperfeinübergang $|\pm \frac{1}{2}\rangle \leftrightarrow |\pm \frac{3}{2}\rangle$ hervorgeht, und bei einer Feldstärke von $\vec{B} = (732; 173; 219)$ G eine Resonanzfrequenz von $\Delta\nu_{HF} = 8,63$ MHz besitzt [65, 157]. Um Felder dieser Größenordnung zu generieren, wurden die Niederfeldspulen gegen das supraleitende Hochfeldspulensystem ausgetauscht (s. Kap. 3.5.2). Wird das statische Magnetfeld entsprechend eingestellt, die Hochfrequenz angepasst und die Kohärenzdynamik mittels Spinechos gemessen, so ergibt sich der in Abbildung 6.8 blau dargestellte Verlauf. Zwar wird eine erneute Steigerung der Kohärenzzeit auf $T_2 = 55,0 \pm 0,5$ ms detektiert, doch eine Zunahme in den erwarteten Bereich von mehreren 100 ms [166] wird nicht beobachtet. Die Gründe hierfür sind in voneinander abweichenden Bedingungen der Experimente zu suchen. Einerseits kommt es infolge des nicht absolut gleichen Kristallschnittes zu Verkippungen der Kristallachsen relativ zum Magnetfeldkoordinatensystem. Andererseits liegen vermutlich nicht vernachlässigbare Kalibrierungsunterschiede zwischen den Systemen zur Erzeugung der Magnetfelder vor. Da die Qualität eines ZEFOZ-Punktes entscheidend von der Präzision des Magnetfeldes bzw. der Krümmung der Zeeman-Verschiebung abhängt, wirken sich bereits Abweichungen von unter 1 % teilweise drastisch auf T_2 aus [152, 166]. Die hier gefundene, leicht abweichende Übergangsfrequenz von $\Delta\nu_{HF} = 8,64$ MHz stützt diese Vermutung.

6.2.5 Verlängerung der Kohärenzzeit durch externe Magnetfelder

Weder theoretisch berechnete, noch in anderen Experimenten ermittelte ZEFOZ-Punkte sind auf einen neuen experimentellen Aufbau übertragbar. Dies ist vor allem auf unbekannte Hintergrundfelder, Verkippungen des Kristalls sowie unterschiedliche Kalibrierungen zurückzuführen. In der Regel sind diese Faktoren in jedem Aufbau anders ausgeprägt und werden in theoretischen Rechnungen daher nicht berücksichtigt. Die optimale ZEFOZ-Konfiguration kann sich dabei sogar am selben Aufbau zwischen verschiedener Mess-Tage durch zeitlich variierende Störungen ändern. Eine Anpassung des vermuteten Magnetfeldes zur Reduktion der Dekohärenz ist daher immer erforderlich. Dies gilt insbesondere, wenn die Magnetfelder in drei Dimensionen mit einer Genauigkeit von unter 0,5 G eingestellt werden müssen [166]. Im hier diskutierten Experiment mit Magnetfeldbeträgen von ± 2000 G pro Raumrichtung ergeben sich ca. eine Billion Einstellmöglichkeiten. Um die Optimierung in diesem großen Parameterraum möglichst effizient durchführen zu können, muss daher auf ein automatisiertes Verfahren zurückgegriffen werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein automatisierter Suchalgorithmus implementiert, dessen Ablauf im Folgenden kurz dargestellt wird. Für eine ausführliche Diskussion der technischen Aspekte sei auf [151] verwiesen. Die mittels des Algorithmus erzielten Resultate bei der Optimierung des ZEFOZ-Feldes zur Steigerung der Kohärenzzeit in Pr:YSO werden anschließend vorgestellt.

6.2.5.1 Ablauf der automatisierten Magnetfeldoptimierung

Die Suche eines Magnetfeldes zur Steigerung der Kohärenzzeit T_2 basiert auf den Gradientenverfahren. Dazu wird der Magnetfeldraum in ein Suchraster der Schrittweite ΔB unterteilt, welches sich im Verlaufe der Optimierung zur Konvergenz automatisch anpasst. Ausgehend von einem Anfangswert (charakterisiert durch das Magnetfeld \vec{B}_0 und der HF-Übergangsfrequenz der Kohärenz $\Delta\nu_{HF,0}$) werden die umgebenden Magnetfeldkoordinaten durch Spinechos bezüglich der zu erwartenden Kohärenzzeit bewertet. Anschließend wird der Gradient als Richtung des stärksten T_2 -Anstiegs errechnet und das projizierte Magnetfeld gesetzt. Der Algorithmus läuft iterativ ab und besteht aus folgenden Einzelschritten, deren Abfolge auch in Abbildung 6.9 schematisch dargestellt ist:

(a) Stützstelle festlegen: Zu Beginn einer jeden Iteration wird ein neue Stützstelle $(\vec{B}, \Delta\nu_{HF})$ gesetzt. Bei der ersten Iteration handelt es sich dabei um Werte, welche sich z.B. aus Berechnungen [50, 58] oder anderen Experimenten [65] ergeben. Ab der zweiten Iteration werden diese Werte durch die in den Schritten (e) und (c) ermittelten Daten ersetzt.

(b) Feld setzen: Beginnend mit den Koordinaten der Stützstelle (dem Ursprung der aktuell untersuchten Magnetfeldumgebung) werden Felder gesetzt, welche in jeder Raumrichtung \vec{e}_i um die Schrittweite $\pm\Delta B$ verschoben sind. Dabei werden zwischen zwei Feldeinstellungen jeweils die Schritte (c) und (d) durchgeführt.

(c) Spektroskopie: Durch das geänderte Feld ist die Resonanzfrequenz des betrachteten Hyperfeinübergangs Zeeman-verschoben. Um die Kohärenzeigenschaften des Übergangs mittels Spinechos (Schritt (d)) präzise untersuchen zu können,

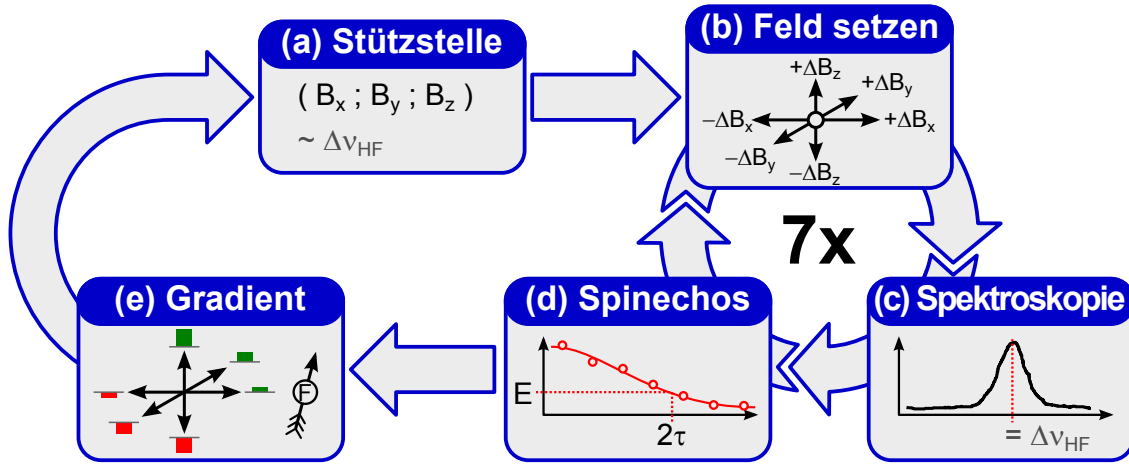


Abbildung 6.9: Ablaufdiagramm der automatisierten Magnetfeldoptimierung. Die Schritte (b)-(d) werden für jede Raumrichtung sowie die ursprüngliche Stützstelle (a) durchgeführt. Anschließend wird der Gradient (e) gebildet, aus dem sich eine neue Stützstelle (a) ergibt.

muss die Resonanzfrequenz bis auf wenige kHz bekannt sein. Um diese zu bestimmen, wird in einem geeignet gewählten Bereich die HFS symmetrisch um Δv_{HF} der aktuellen Stützstelle mittels der Raman-Heterodyn-Technik (s. Kap. 6.1) spektroskopiert. Der hieraus ermittelte Wert wird an den Arbiträr-Funktionsgenerator zur Erzeugung des HF-Feldes übergeben (s. Kap. 3.5.3).

(d) Spinecho-Messung: Die Bewertung der Kohärenzeigenschaften unter Einfluss des externen Magnetfeldes $\vec{B} \pm \Delta B \vec{e}_i$ erfolgt mittels Spinechos (s. Kap. 6.2.1). Es können automatisch zeitaufgelöste Kohärenzzerfälle durch Variation der Echoverzögerung 2τ aufgenommen werden (s. auch Kap. 6.2.4). Entsprechende Regressionsalgorithmen zur direkten Bestimmung von T_2 sind im Programmcode implementiert. Da diese Bewertung aufgrund der vielen Messpunkte und der hohen Mittelungsanzahl aber vergleichsweise lange dauert, wird meist auf ein vereinfachtes Verfahren zurückgegriffen: Pro Magnetfeld wird lediglich bei einer einzigen, großen Echoverzögerung das Spinechosignal gemessen, dessen Amplitude E nun als Bewertungskriterium dient. Die Echoverzögerung kann dabei während des Programmablaufs zur Anpassung an längere Kohärenzzerfälle frei gewählt werden. Der Bewertungsparameter F_i wird durch die in der Magnetfeld-Konfiguration i erreichte Kohärenzzeit $T_{2,i}$ oder die Amplitude des Spinechosignals E_i definiert.

(e) Gradientenbildung: Das Magnetfeld bei der nächsten Iteration wird auf Basis der aktuellen Stützstelle und den in Schritt (d) gewonnenen Bewertungsparametern $\{F_i\}$ berechnet. Hierzu werden die F_i der umgebenden Magnetfeldpunkte ($i = \pm x, \pm y, \pm z$) mit F_0 verglichen. Ist die Differenz $\Delta F_i = F_i - F_0$ positiv, so ist eine Steigerung von T_2 in dieser Richtung zu erwarten. Für den Gradientenvektor

$$\Delta \vec{B}' = \frac{(\Delta F_x; \Delta F_y; \Delta F_z)}{\sqrt{\Delta F_x^2 + \Delta F_y^2 + \Delta F_z^2}} \Delta B \quad (6.12)$$

wird nur die jeweils positive bzw. größere Differenz ΔF_i pro Raumrichtung herangezogen. Die neue Stützstelle ergibt sich dann durch Addition von (6.12) an die

Koordinaten der aktuellen Stützstelle. Als vorläufige Übergangsfrequenz $\sim \Delta_{HF}$ der nächsten Stützstelle dient die in der aktuellen Iteration gefundene Frequenz $\Delta\nu_{HF}$ im Zentrum der bereits untersuchten Magnetfeldumgebung.

6.2.5.2 Experimentelle Ergebnisse

Als Startpunkt des automatisierten ZEFOZ-Suchverfahrens wurde die bereits in Kapitel 6.2.4 vorgestellte Konfiguration $\vec{B}_0 = (732; 173; 219)\text{G}$ und $\Delta\nu_{HF} = 8,64\text{MHz}$ gewählt [65]. Exakt bei dieser Einstellung konnte zwar kein optimales ZEFOZ-Verhalten beobachtet werden (s. Abb. 6.8), dennoch ist die Konfiguration ausreichend gut als Startwert zur Optimierung geeignet. Die anfängliche Schrittweite beträgt $\Delta B = 2\text{G}$, um einen schnellen Fortschritt zu gewährleisten. Wird in drei aufeinander folgenden Iterationen keine Verbesserung erzielt (alle $\Delta F_i < 0$), verringert sich ΔB automatisch um die Hälfte, so dass die Auflösung zunimmt.

Als Bewertungskriterium der Kohärenzlebensdauer wird die Signalstärke des Spinechos bei einer statischen Echoverzögerung 2τ herangezogen (d.h. $F = E(2\tau)$). Zu Beginn betrug $2\tau = 80\text{ms}$. Da aber bereits nach wenigen Iterationen eine deutlicher Anstieg der Signalstärke zu verzeichnen war, wurde die Echoverzögerung bei Iteration 5 auf $2\tau = 200\text{ms}$ und bei Iteration 9 auf $2\tau = 350\text{ms}$ erhöht. Dies ist erforderlich, da die getesteten Magnetfelder erst bei vergleichsweise großen Verzögerungen deutliche Unterschiede in der relativen Signalamplitude bewirken. Hierdurch kann die durch die ZEFOZ-Technik erreichte Erhöhung der Kohärenzzeit besser von zufälligen Schwankungen des Untergrundes getrennt werden. Die Zahl der Spinecho-Mittelungen pro getesteter Raumrichtung kann so auf einem moderaten Level von 40 Mittelungen gehalten werden. Bei einer Echoverzögerung im Bereich von 200ms ergibt dies aufgrund der sieben zu testenden Feldkonfigurationen ($i = 0, \pm x, \pm y, \pm z$) eine Laufzeit pro Iteration von ca. einer Minute. Das Setzen der Felder (b), die Spektroskopie (c) sowie das initiale Lochbrennen innerhalb der Spinechosequenz (s. Kap. 6.2.1) laufen typischerwei-

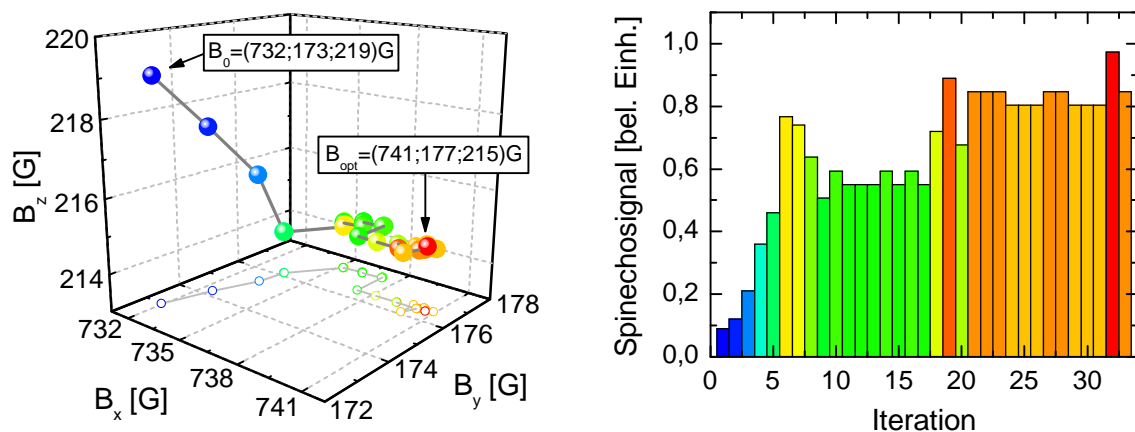


Abbildung 6.10: Zeitlicher Ablauf der automatisierten Magnetfeldoptimierung. Links: Änderung der Feldstärke von $\vec{B}_0 = (732; 173; 219)\text{G}$ hin zum optimalen Wert $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215)\text{G}$. Die Farbkodierung entspricht der Stärke des ansteigenden Spinechosignals (rechts).

se innerhalb weniger Millisekunden ab und sind deshalb nicht kritisch bezüglich der Laufzeit. Des Weiteren kann durch die relativ großen Echoverzögerungen eine Optimierung auf gesteigerte Übergangsmomente statt auf reduzierte Dekohärenz vermieden werden [151]. Werden die Echoverzögerungen erhöht, kommt es im Vergleich zur vorherigen Iteration zu einem Einbruch des Spinechosignals. Dies ist nicht durch Dekohärenz bedingt, sondern durch zeitliche Abnahme der Kohärenzamplitude nach dem Modell des Phasengedächtnisses (s. Kap. 6.2.2) und kann durch einen Skalierungsfaktor δE herausgerechnet werden (s. Anhang D).

Abbildung 6.10 zeigt die experimentellen Ergebnisse der automatisierten Magnetfeldoptimierung. Links ist die Änderung des Magnetfeldes im dreidimensionalen Raum gezeigt. Die Lage der einzelnen Stützstellen ist durch Punkte markiert, deren Farbe mit der Stärke des jeweiligen Spinechosignals korreliert (s. Abb. 6.10 rechts). Wie erwartet beobachtet man einen gerichteten Verlauf des Optimierungspfades infolge des Gradientenverfahrens. Des Weiteren ist die automatische Verringerung der Schrittweite von anfänglich $\Delta B = 2\text{ G}$ auf schließlich $\Delta B = 0,2\text{ G}$ zu erkennen. Der Algorithmus konvergiert nach ca. 30 Iterationen zu einem optimierten Magnetfeld von $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215)\text{ G}$ und einer Hyperfein-Übergangsfrequenz von $\Delta\nu_{HF} = 8,636\text{ MHz}$. Die Konvergenz spiegelt sich auch in Abbildung 6.10 rechts in dem abflachenden Verlauf des Spinechosignals gegen die Iterationsnummer wieder.

Die durch den Suchalgorithmus gefundene Konfiguration kann nun mittels einer zeitaufgelösten Spinechomessung bezüglich ihrer Kohärenzeigenschaften untersucht werden. Abbildung 6.11 zeigt in Rot den aufgenommenen Kohärenzzerfall bei \vec{B}_{opt} . Die Daten (\circ) stimmen sehr gut mit einer angepassten Kurve (—) auf Basis des Phasengedächtnisses überein und ergeben eine Kohärenzzeit von $T_{2,opt} = 392 \pm 14\text{ ms}$. Im Vergleich zur initialen Konfiguration, bei der eine Kohärenzzeit von $T_{2,0} = 55 \pm 0,5\text{ ms}$ detektiert wurde (—), erreicht das hier imple-

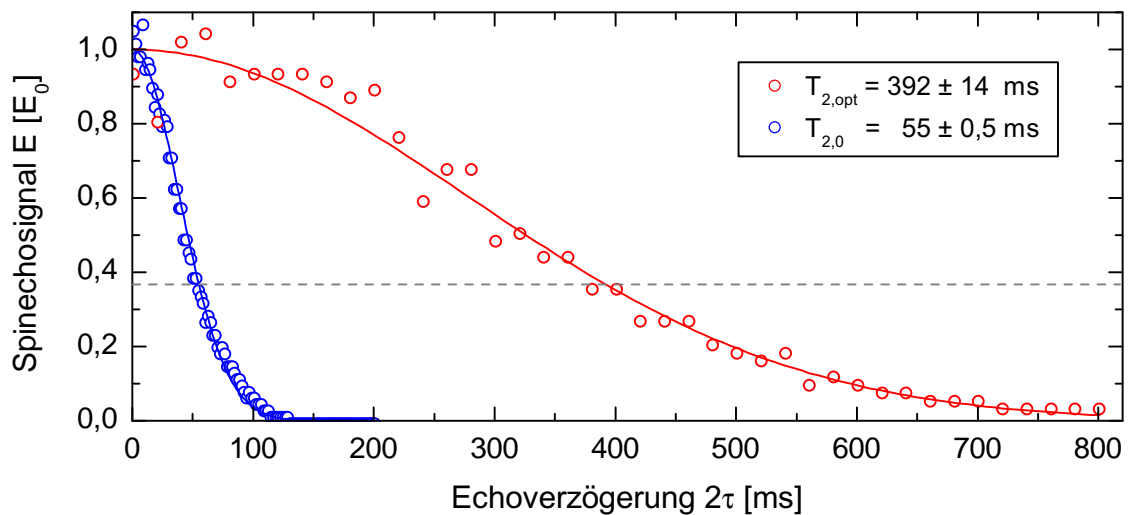


Abbildung 6.11: Vergleich des Kohärenzzerfalls für den in [65] dokumentierten ZEFOZ-Punkt (\circ) sowie für die optimierte Feldkonfiguration $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215)\text{ G}$ (\circ). Regressionen gemäß dem Modell des Phasengedächtnisses (—, —).

mentierte Optimierungsverfahren somit eine Steigerung um über einen Faktor 7. Bemerkenswert ist dabei die geringe relative Änderung des Magnetfeldes während des gesamten Optimierungsprozesses im Bereich von lediglich 1 %. Dies verdeutlicht die hohen Anforderungen, welche an Homogenität, Präzision und zeitliche Stabilität der statischen Magnetfelder gestellt werden (s. auch Kap. 3.5.2).

Die Wirkung des optimierten Magnetfeldes auf die HFS der Pr^{3+} -Ionen kann mittels der RHS untersucht werden. Abbildung 6.12 zeigt experimentell ermittelte Spektren der durch den Zeeman-Effekt aufgespaltenen HFS des elektronischen Grundzustandes 3H_4 im Frequenzbereich von $\Delta\nu_{\text{HF}} = 1 \dots 20 \text{ MHz}$. Das Magnetfeld wurde für jede Raumrichtung in einem Intervall von 500 G um die optimierte Feldkoordinate variiert, während die beiden anderen Komponenten konstant auf den optimierten Werten gehalten wurden. In allen drei Spektren wird bei der optimierten Magnetfeldkonfiguration \vec{B}_{opt} ein Übergang bei $\Delta\nu_{\text{HF}} = 8,64 \text{ MHz}$ detektiert (+). Dieser zeichnet sich jeweils durch einen extremalen Verlauf (d.h. $\frac{\partial \nu}{\partial B} \Big|_{\vec{B}_{\text{opt}}} \approx 0$) und eine geringe Krümmung ($\partial^2 \nu / \partial B^2$) aus. Insbesondere in x -Richtung wird über den gesamten Feldbereich ein nahezu horizontaler Verlauf, d.h. keine Magnetfeldabhängigkeit, beobachtet. Die präsentierten Zeeman-Spektren bestätigen somit den ZEFOZ-Charakter der optimierten Magnetfeldkonfiguration.

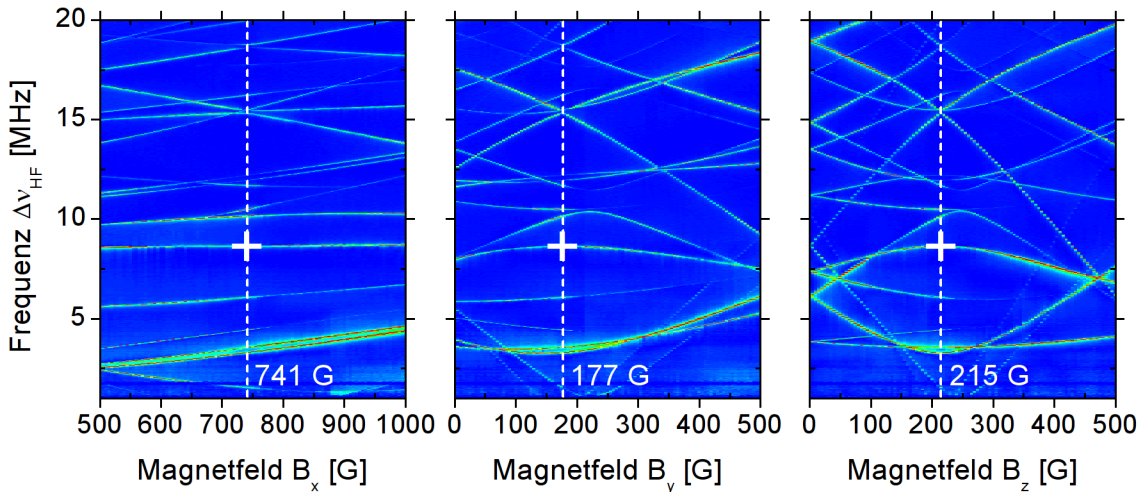


Abbildung 6.12: Raman-Heterodyn-Spektren in Umgebung des optimalen ZEFOZ-Punktes. Es wurde je eine Feldkomponente B_i ($i = x, y, z$) in Schritten von 5 G variiert, während die beiden anderen Komponenten B_j ($j \neq i$) den optimierten Werten $\vec{B}_{\text{opt}} \cdot \vec{e}_j$ entsprachen.

Durch Anlegen eines geeigneten Magnetfeldes \vec{B}_{opt} konnte in den hier präsentierten Experimenten eine Erhöhung der Kohärenzzeit von $T_2 \approx 500 \mu\text{s}$ (für ein Magnetfeld $B = 0$) um fast drei Größenordnungen auf $T_{2,\text{opt}} = 392 \text{ ms}$ demonstriert werden. Dieser erste Schritt zur Reduktion der Dekohärenz beruht vor allem auf der Minimierung störender Spinfluktuationen, sowie der reduzierten Abhängigkeit gegenüber externen und internen Feldschwankungen. Um die Pr^{3+} -Ionen von den restlichen Einflüssen zu entkoppeln, und die Kohärenzzeit weiter zu erhöhen, werden im Folgenden die statischen Felder der ZEFOZ-Technik mit hochfrequenten Magnetfeldpulsen kombiniert.

6.3 Dynamische Dekohärenzkontrolle

Die dynamische Dekohärenzkontrolle (DD) klassifiziert Techniken, bei denen ein relevantes Quantensystem auf „stroboskopische“ Weise manipuliert wird, um es von dessen Umgebung zu entkoppeln [167–170]. Die Methoden wurden ursprünglich im Bereich der Kernspinresonanz entwickelt und sind auch unter dem Begriff der „dynamischen Entkopplung“ bekannt [168, 169]. Im Rahmen dieser Arbeit wird die wohl prominenteste Variante der DD – die Carr-Purcell (CP) Pulssequenz [171] – dazu genutzt, die Lebensdauer präparierter Kohärenzen zu erhöhen. Für eine detaillierte Einführung in das umfassende Feld der DD sei hier auf [172–174] verwiesen.

Das grundlegende Prinzip der hier genutzten DD kann anhand Abbildung 6.13 nachvollzogen werden. Im oberen Teil ist die bereits aus Kapitel 4.3 bekannte Technik der Rephasierung skizziert. Unter idealen Bedingungen (blau hinterlegt), werden die auseinanderdriftenden Kohärenzphasen durch eine Sequenz von zwei resonanten HF- π -Pulsen invertiert, so dass nach der Speicherzeit Δt (welche hier gerade der Zykluslänge τ_c entspricht) wieder die ursprüngliche Gesamtkohärenz vorliegt. Unter realen Bedingungen (rot hinterlegt) kommt es allerdings zu stochastischen Rekonfigurationen des Y^{3+} -Spingitters (s. Kap. 6.2.2). Dies wirkt sich infolge des Zeeman-Effekts auf die Resonanzfrequenzen der Pr^{3+} -Hyperfeinübergänge aus. Bei solchen Spin-Rekonfigurationen (rot gestrichelt) ändert sich die zeitliche Evolution der einzelnen Kohärenzphasen. Nach Δt sind die nicht mehr identisch, so dass ein reduziertes Signal detektiert wird.

Bei der CP-Sequenz (s. Abb. 6.13 unten) werden die zwei HF- π -Pulse durch eine Vielzahl N solcher Blöcke ersetzt, deren jeweilige Zyklusdauer $\tau_c = \Delta t/N$ beträgt. Ist diese kleiner als die Lebensdauer einer Gitterkonfiguration der Spin-Umgebung ($R\tau_c \lesssim 1$), kann ein weites Auseinanderdriften der Kohärenzphasen effektiv unterbunden werden. Hierbei wird allerdings angenommen, dass es sich um ausreichend „harte“ π -Pulse ($\Omega_{HF} \gg \Gamma_{inhom}^{HFS}$) handelt, so dass eine Phasen-

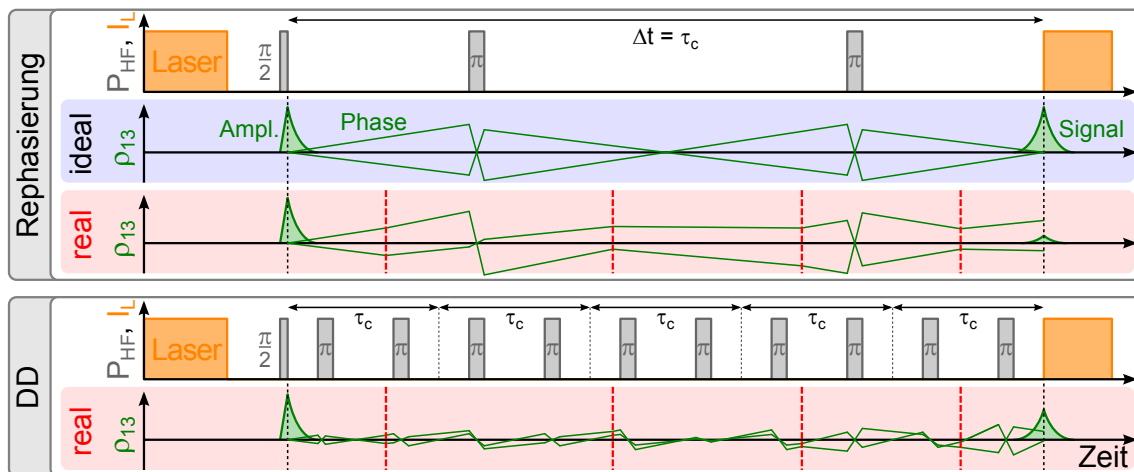


Abbildung 6.13: Skizze der zeitlichen Entwicklung von Kohärenzphase und Amplitude (grün) bei der Rephasierung (oben) und der DD (unten). Unter realen Bedingungen werden die Verläufe durch Spinrekonfigurationen (rot gestrichelt) gestört.

evolution während der Manipulation vernachlässigt werden kann. Im Grenzfall $\tau_c \ll R^{-1}$ sind die Kohärenzphasen über den gesamten Speicherzeitraum hinweg nahezu identisch, so dass nach Δt ein intensives Signal detektiert werden kann.

Um die im vorigen Abschnitt 6.2 erreichte Kohärenzzeit von $T_2 = 392$ ms weiter zu verlängern, wird die ZEFOZ-Technik mit der DD kombiniert. Abbildung 6.14 zeigt durch Spinecho-Messungen ermittelte Kohärenzzerfälle, welche aufgrund der verwendeten CP-Entkopplungssequenz nun exponentiell abfallen [175]. Die Experimente wurden bei $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215)$ G und für unterschiedliche Zykluszeiten τ_c durchgeführt. Die π -Pulsdauer lag aufgrund der Breitbandanpassung (s. Kap. 3.5.3) bei $\tau_\pi = 20 \mu\text{s}$. Durch die DD wird eine signifikante Steigerung der Kohärenzzeit erreicht. Dabei ist deutlich der Anstieg der Kohärenzzeit zu kürzeren Zykluszeiten, d.h. besserer Entkopplung, zu erkennen. Für die kürzeste Zykluszeit $\tau_c = 100 \mu\text{s}$ liefert eine Anpassung eine Kohärenzzeit von $T_2 = 59,6 \pm 9,4$ s. Im Vergleich zur einfachen Spinecho-Rephasierung wird somit eine Steigerung um über einen Faktor 150 erreicht. Eine weitere Reduktion der Zykluszeit zur effizienteren Entkopplung war aufgrund der großen Zahl von 20000 Pulsen pro Sekunde, und der dadurch beginnenden Erwärmung des Kristalls, jedoch nicht möglich.

In vergleichbaren Spinecho-Experimenten demonstrierten *Fraval et al.* Kohärenzzeiten von maximal 30 s in Pr:YSO [166]. Diese wurden mit DD-Zykluszeiten im Bereich von $\tau_c \sim 5$ ms erreicht. Für kleinere τ_c wurde keine Verbesserung beobachtet, was auf die Akkumulation von Pulsflächenfehlern zurückgeführt wurde. Im Gegensatz dazu wirkt sich in den hier durchgeführten Experimenten selbst die Reduktion von $\tau_c = 1$ ms auf $\tau_c = 100 \mu\text{s}$ deutlich auf T_2 aus. Dies deutet auf eine hohe Stabilität und Präzision der hier generierten HF- π -Pulse hin.

Mittels der Kombination von ZEFOZ-Technik und DD konnte somit die Kohärenzzeit bis in den makroskopischen Bereich der natürlichen Relaxationsdauer ausgedehnt werden. Die hier demonstrierte Zerfallsdauer von einer Minute stellt die bislang längste gemessene Kohärenzzeit in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ dar.

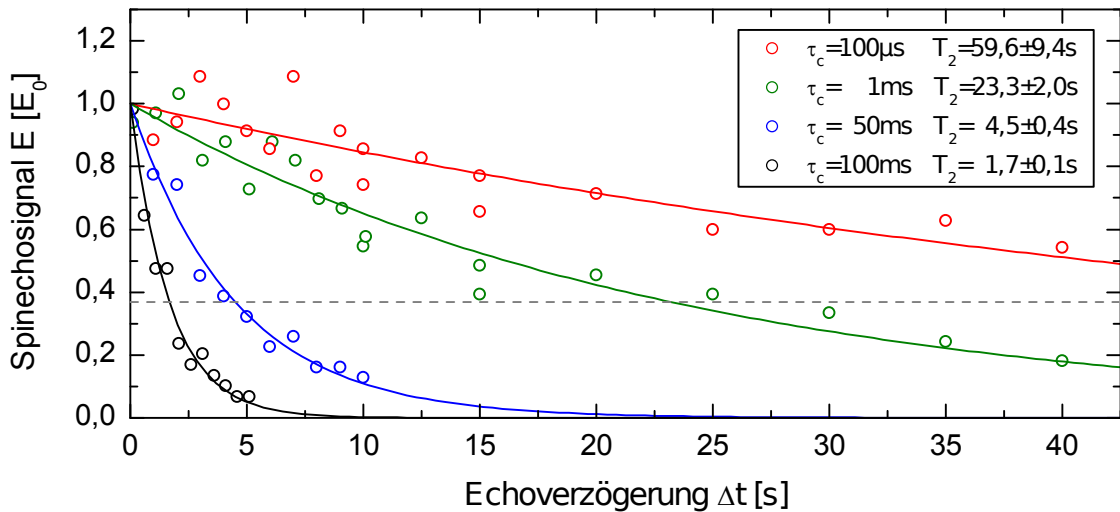


Abbildung 6.14: Vergleich des Kohärenzzerfalls für CP-Entkopplungssequenzen mit unterschiedlicher Zykluszeit: $\tau_c = 100 \mu\text{s}$ (\circ), 1 ms (\circ), 50 ms (\circ), 100 ms (\circ). Die Experimente fanden bei der optimierten ZEFOZ-Feldkonfiguration $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215)$ G statt.

Kapitel 7

Lichtspeicherung III

Experimentelle Erhöhung der Speicherdauer

In den bisher präsentierten Experimenten konnte, durch eine Kombination statischer sowie hochfrequenter Magnetfelder, die Lebensdauer atomarer Kohärenzen in Pr:YSO um mehrere Größenordnungen, bis in den Bereich einer Minute, ausgedehnt werden. Der Nachweis der Kohärenzdynamik erfolgte dabei aufgrund der einfachen Handhabbarkeit durch Spinechos (s. Kap. 6.2.1). Diese erlauben zwar eine direkte Untersuchung der komplexen, magnetfeldabhängigen Niveaustuktur, sind im Allgemeinen aber aufgrund der fehlenden Kopplung an ein Start-Photon als potentielle Quantenspeicher nur bedingt geeignet. Die verwandte Technik der Photonechos umgeht diese Problematik, indem die Kohärenz auf optischem Wege zwischen Grund- und angeregtem Zustand erzeugt wird. Allerdings kommt es hier infolge von dissipativen Effekten, wie verstärkter spontaner Emission, zu einem Abbau der Kohärenz während der Speicherzeit [176, 177].

In den folgenden Experimenten werden daher die zuvor erprobten Magnetfeld-Techniken auf die adiabatische Lichtspeicherung angewandt. Die Kombination dieser Konzepte verspricht eine signifikante Erhöhung der Speicherdauer kohärenter optischer Pulse im verwendeten Medium. Die Herausforderung besteht dabei in der komplexen Hyperfeinstruktur, welche sich unter Einfluss externer statischer Magnetfelder ergibt. Im Gegensatz zur Spinecho-Technik muss bei der Lichtspeicherung mittels EIT das komplexe Medium geeignet präpariert werden, damit optisches Kontroll- und Nachweisfeld lediglich mit dem relevanten Ensemble von Pr^{3+} -Ionen wechselwirken. Da eine Präparation aber infolge der großen Zahl möglicher Kopplungen innerhalb des inhomogen optischen Übergangs und der im Allgemeinen unbekannten Oszillatorstärken auf analytischem Wege kaum herleitbar ist, muss in diesem Kapitel auf einen anderen Ansatz zurückgegriffen werden. Zur Lösung dieses Optimierungsproblems, in einem sehr großen Suchraum, kommt eine rückkopplungsgesteuerte Pulsformung mittels eines evolutionären Algorithmus (EA) zum Einsatz. Diese Technik hat im Bereich der Kurzpulsphysik eine große Bedeutung erlangt, da sich mit ihr, ohne vollständige Kenntnis aller Systemparameter, chemische und atomare Prozesse gezielt steuern lassen [178–183].

Im Folgenden werden erst die grundlegenden Prinzipien eines EA erläutert. Anschließend werden die experimentellen Resultate der Präparation des komplexen, Zeeman-aufgespaltenen Mediums mittels des EA vorgestellt. Im letzten Schritt wird die DD dazu genutzt die Speicherdauer weiter zu erhöhen. Schließlich wurden die Techniken mit der Bildspeicherung kombiniert, um einen EIT-getriebenen Speicher mit langer Speicherzeit sowie hoher Speicherkapazität zu demonstrieren.

7.1 Evolutionäre Strategien

Evolutionäre Algorithmen sind, wie die verwandten Konzepte der genetischen Algorithmen und der genetischen Programmierung, Problemlösungsstrategien, welche auf der Darwinschen Evolutionstheorie [184] beruhen. Im Rahmen dieser Arbeit spielt lediglich der EA eine Rolle, welcher sich im Vergleich zu den anderen Konzepten vor allem durch eine reelle Parametrisierung des Suchraums und ein anderes Fortpflanzungsverhalten auszeichnet [185, 186]. EA werden bei einer Vielzahl von Anwendungen in Forschung und Industrie eingesetzt [178–183]. Im Rahmen dieses Projektes konnte beispielsweise mittels eines EA die Speichereffizienz in EIT-getriebenen Lichtspeicherexperimenten durch rückkopplungsgesteuerte Pulsformung erhöht werden [111]. Im Folgenden wird der EA erstmals dazu eingesetzt, eine geeignete Präparation des Mediums unter Einfluss eines externen Magnetfeldes zu finden. Dabei kann auf vorangegangene Arbeiten am hier diskutierten experimentellen Aufbau aufgebaut werden [73, 117, 187].

Evolutionäre Algorithmen imitieren die Prinzipien der biologischen Evolution. Analog zur Biologie werden einzelne Vertreter einer Spezies (Individuen) als mögliche Lösungen für ein gegebenes Problem (die Umgebungsbedingungen) angesehen. Individuen, welche zur gleichen Zeit existieren, bilden eine Generation. Die Weiterentwicklung der Spezies zum optimalen Individuum basiert auf Vererbung, Mutation, und der natürlichen Selektion über die Generationen hinweg. Bei der Vererbung und der Mutation werden spezifische Eigenschaften eines Individuums, welche durch dessen Gene charakterisiert sind, in die nächste Generation übertragen bzw. leicht geändert. Die natürliche Selektion sorgt dafür, dass nur solche Individuen an Vererbung und Mutation teilnehmen, welche gut an die Umgebungsbedingungen angepasst sind, und somit eine höhere Überlebenschance besitzen. Dieses einfache Prinzip ermöglicht einem EA auf iterative Weise optimierte Lösungen für komplexe Problemstellungen zu finden. Der Ablauf des hier genutzten EA ist schematisch in Abbildung 7.1 dargestellt und wird nun schrittweise erläutert:

Initialisierung: Zuerst wird eine Startgeneration durch zufällige Wahl der einzelnen Gene eines jeden Individuums initialisiert. Die Gene entsprechen im hier diskutierten Experiment Leistungs- bzw. Frequenzwerten, welche als äquidistante Stützstellen dienen. Diese werden durch stetige Funktionen verbunden, so dass ein Individuum einem Intensitäts- bzw. Frequenzverlauf entspricht. Alle wichtigen Parameter wie Anzahl der Individuen, Genanzahl, Schranken der Genwerte, Varianz der Gene, etc. können vor dem Start des EA manuell festgelegt werden.

Bewertung: Um zu bestimmen, wie gut sich ein Individuum als Lösung für das gestellte Optimierungsproblem eignet, wird dieses im Experiment getestet. Im vorliegenden Fall werden die zuvor generierten Pulsverläufe zur Präparation des Mediums vor einem Lichtspeicherexperiment eingesetzt. Anhand der Pulsfläche des rücktransformierten Signalpulses kann dann den einzelnen Individuen jeweils eine Güte („Fitness“) zugeordnet werden. Zur Kompensation von Messrauschen wird die Bewertung für jedes Individuum einer Generation mehrfach durchgeführt. Den Individuen wird entsprechend ihrer Güte ein Rang zugeordnet.

Selektion: Um einen Selektionsdruck auf die Individuen auszuüben, wird die Methode der rangbasierten Selektion angewandt. Dabei wird typischerweise ein An-

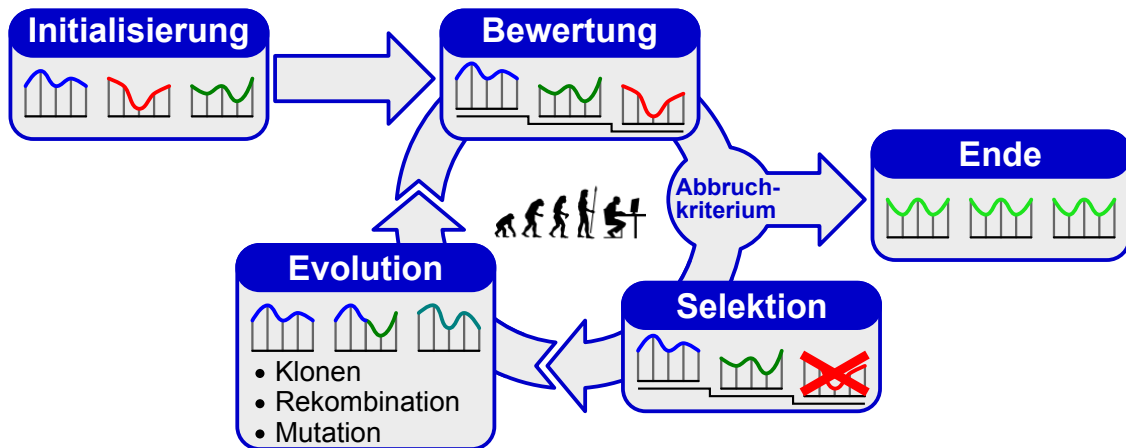


Abbildung 7.1: Schematisches Ablaufdiagramm eines evolutionären Algorithmus.

teil von 20 – 40 % der Individuen mit kleinstem Rang bzw. schlechtester Güte verworfen. Lediglich die gut angepassten Individuen dienen als Eltern der nächsten Generation. Durch den Prozentsatz der entfernten Individuen kann die Konvergenzgeschwindigkeit des EA kontrolliert werden. Dabei ist zu beachten, dass durch eine zu starke Selektion der Parameterraum nicht mehr weiträumig durchsucht werden würde und der EA in einem lokalen Optimum konvergieren könnte. Um dies zu vermeiden, kann die Selektionsrate während des EA angepasst werden.

Evolution: Im zentralen Element des EA werden durch drei Mechanismen die Gene der nächsten Generation bestimmt und somit die Spezies weiterentwickelt:

1. Beim **Klonen** wird ein gewisser Teil (typisch 10 – 20 %) der besten Individuen unverändert in die nächste Generation übernommen. Hierdurch wird zwar kein Fortschritt erzielt, der aktuell erreichte Status aber abgesichert. Bei starken Messschwankungen bietet es sich an mehr Individuen zu klonen.
2. Bei der **Rekombination** können Elternindividuen, abhängig von externen Kontrollparametern [117, 187] sowie ihrer Güte, einzelne Genabschnitte untereinander austauschen. Hierbei wird das Verfahren des *one-point-crossover* angewandt, bei dem das erzeugte Individuum lediglich aus zwei aneinandergesetzten Teilabschnitten bestehen darf. Durch die Rekombination wird folglich die Durchmischung des Genpools nachgebildet.
3. Die **Mutation** ist der einzige Mechanismus, bei dem neue Information dem bereits vorhandenen Genpool hinzugefügt wird. Hierzu wird ein Teil (typisch $\sim 20\%$) der Gene eines Individuums zufällig variiert. Die Stärke der Variation – der Mutationsgrad – wirkt sich auf die Konvergenz des EA aus. Ein optimaler Fortschritt wird erreicht, wenn das Verhältnis von erfolgreicher Mutation zu allen Mutationen ein Fünftel beträgt [188]. Gemäß dieser 1/5-Regel wird der Mutationsgrad während der Optimierung dynamisch angepasst [117].

Während des EA wiederholen sich Bewertung, Selektion und Evolution fortlaufend. Dabei werden durch den zyklischen Lernprozess mit zunehmender Generationszahl immer bessere Lösungen entwickelt. Geeignete **Abbruchkriterien** lassen sich über eine Fitness-Schwelle oder die Konvergenzgeschwindigkeit definieren. Ebenso kann der EA manuell abgebrochen werden.

7.2 Präparation des Mediums

Alle folgenden Experimente werden bei dem zuvor ermittelten optimalen Magnetfeld $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215) \text{ G}$ durchgeführt. Die Besetzungsverhältnisse innerhalb der komplexen, Zeeman-aufgespaltenen Niveaustuktur (s. Abb. 6.12) sollen nun durch den EA derart manipuliert werden, dass ein spektral isoliertes Λ -System zur EIT-getriebenen Lichtspeicherung vorliegt. Der im vorangegangenen Kapitel diskutierte Hyperfeinübergang, welcher bei einer Resonanzfrequenz von $\Delta\nu_{HF} \approx 8,64 \text{ MHz}$ mit $T_2 = 392 \text{ ms}$ ein ausgeprägtes ZEFOZ-Verhalten aufweist, soll dabei in dessen niedrigstem Zustand $|1\rangle$ präpariert werden.

Die Schnittstelle zwischen EA und Experiment ist durch die Bewertung der Individuen in einem Lichtspeicherungsexperiment gegeben (s. Kap. 7.1). Ein Individuum entspricht dabei einem Präparationspuls, dem gemäß der Größe des jeweils rücktransformierten Lichtspeichersignals eine Güte zugeordnet wird. Der Ablauf eines solchen Tests kann anhand Abbildung 7.2 nachvollzogen werden. Hier ist eine experimentell ermittelte Sequenz für ein fortgeschrittenes Stadium des EA gezeigt.

Im ersten Schritt wird der durch den EA errechnete Pulsverlauf mittels des AOM in den optischen Präparationspuls (grün hinterlegt) umgewandelt, welcher auf Strahlengang Kontroll 1 durch den Kristall propagiert. Als Präparationsdauer wurde eine Zeitspanne von $\tau_p = 10 \text{ ms}$ gewählt. Leistung (—) und relative Frequenz (---) des Präparationspulses sind durch 20 äquidistante Stützstellen parametrisiert, welche Werte im Bereichen von $P_p = 0 \dots 50 \text{ mW}$ und $\Delta\nu_p = -10 \dots +30 \text{ MHz}$ annehmen können. Nach einer Relaxationsdauer von 4 ms folgt der bekannte Säuberungspuls ($P_{Saub.}^{max} = 60 \text{ mW}$, $\tau_{Saub.}^{FWHM} = 700 \mu\text{s}$) zur finalen Umverteilung der Besetzung. Die relative Frequenz des Säuberungspulses stimmt dabei mit den folgenden Schreib- und Leseimpulsen überein und beträgt $\Delta\nu_{Saub.} = 2,8 \text{ MHz}$.

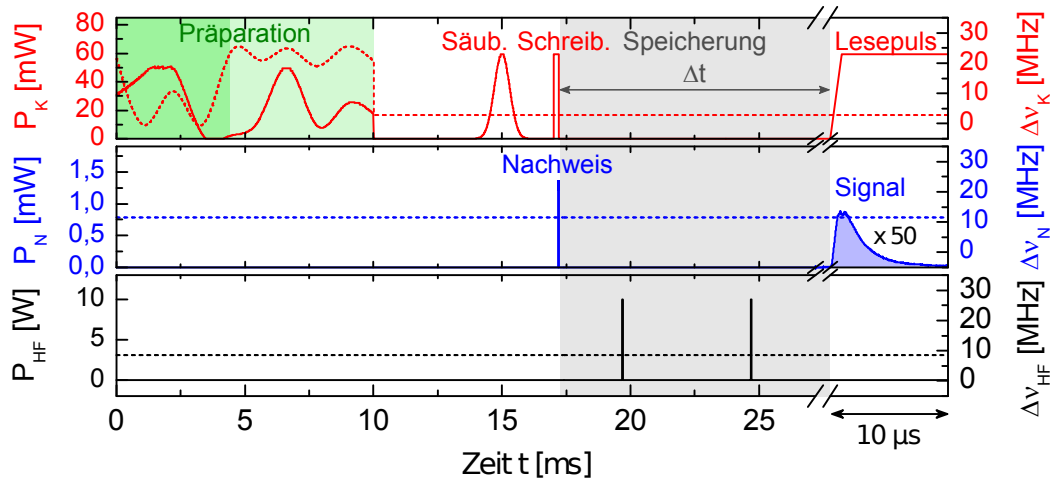


Abbildung 7.2: Experimentelle Pulsfolgen zur Lichtspeicherung auf dem optimierten ZEFOZ-Punkt $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215) \text{ G}$. Die drei Graphen zeigen Leistungs- und Frequenzverläufe von Kontrollfeld (K), Nachweisfeld (N) und der Hochfrequenzpulse (HF). Leistungen (linke Achsen) sind als durchgezogene Linien, Frequenzen (rechte Achsen) als gestrichelte Linien dargestellt. Der durch den EA optimierte Präparationspuls ist grün hinterlegt.

Der Effekt der Präparation auf das Medium wird durch das anschließende Lichtspeicherexperiment getestet. Kontroll-Schreibpuls sowie der spätere Lese-puls weisen zeitlich rechteckförmige Intensitätsverläufe mit einer Breite von $\tau_{S,L} = 200 \mu s$ und einer Leistung von $P_{S,L} = 60 \text{ mW}$ auf. Der wesentlich schwächere Nachweispuls ($\tau_N = 10 \mu s$, $P_N = 1,3 \text{ mW}$) wird zeitgleich mit dem Schreibpuls abgeschaltet, um als kohärente Superposition der Hyperfeinzustände $|1\rangle$ und $|3\rangle$ gespeichert zu werden. Da die Resonanzfrequenz dieses Hyperfeinübergangs beim optimierten Magnetfeld $8,64 \text{ MHz}$ beträgt (s. Kap. 6.2.5), muss zur Kopplung im gewünschten Λ -System die relative Nachweisfrequenz um diesen Betrag zur Kontrollfrequenz verstimmt sein. Hieraus ergibt sich $\Delta\nu_N = 11,44 \text{ MHz}$. Zur Rephasierung der Kohärenz werden zwei HF- π -Pulse ($\tau_\pi = 26$, $P_{HF} \approx 10 \text{ W}$) genutzt, welche symmetrisch um das Zentrum der Speicherzeit angeordnet sind und mit $\Delta\nu_{HF} = 8,64 \text{ MHz}$ resonant zum entsprechenden Hyperfeinübergang sind. Aufgrund der hohen erwarteten Kohärenzzeit von mehreren 100 ms wurde eine Speicherzeit von $\Delta t = 10 \text{ ms}$ gewählt. Im Vergleich zu den vorigen Lichtspeicherzeiten im Bereich von 1 ms wird hierdurch sichergestellt, dass es sich tatsächlich um eine Lichtspeicherung unter ZEFOZ-Bedingungen handelt. Dennoch wird die Speicherzeit nicht zu groß gewählt, um eine hohe Signalstärke zu erhalten und die Optimierungsdauer des EA zu beschränken. Nach der Speicherzeit wird durch den Lese-puls die gespeicherte Kohärenz in den Signalpuls rücktransformiert. Dieser wird detektiert und nach einer analogen Integration durch den EA ausgewertet.

Basierend auf dieser Pulssequenz wird der EA mit einer Anfangsgeneration von 20 zufälligen Individuen gestartet. Nach der Bewertung werden die sechs schlechtesten Individuen verworfen (Selektionsrate 30 %), bevor es zur Evolution kommt. Der Anteil der Mutation wurde auf 45 % festgesetzt. Der anfängliche Mutationsgrad betrug 20 % und wurde während des EA automatisch auf unter 1 % verringert. Auf die Durchmischung des Genpools durch Rekombination wurde wegen der geringen Generationsgröße verzichtet. Die restlichen Individuen werden geklont.

Der Fortschritt des EA kann anhand von Abbildung 7.3 beurteilt werden, in der die Stärke des Lichtspeichersignals – die Güte E_{Sig} – gegen die Generationszahl aufgetragen ist. Es werden zwei Kurven miteinander verglichen: Jeder Punkt der Optimierung (\circ) entspricht der gemittelten Güte aller Individuen einer bestimmten Generation. Es wird der erwartete monotone Anstieg mit einer beginnenden Abflachung ab Generation ~ 220 verzeichnet. Der EA steigert die Lichtspeichereffizienz und konvergiert zu einem optimalen Individuum. Die blau markierten Daten (\blacksquare) symbolisieren die Signalstärke, welche durch ein zufällig ausgewähltes Individuum der ersten Generation erzielt wird. Dieses wird in jeder Generation erneut getestet und dient als Referenz. Der horizontale Verlauf der Referenz deutet auf stabile Messbedingungen während des gesamten Optimierungsprozesses hin.

Das finale Ergebnis des Optimierungsprozesses wird durch den in Abbildung 7.2 dargestellten, grün hinterlegten Präparationspuls repräsentiert. Um die Wirkung dieses Pulses und des anschließenden Säuberungspulses auf das Medium zu verstehen, wird die manipulierte Besetzung durch Absorptionsspektroskopie untersucht. Hierzu wird unmittelbar vor dem Schreibpuls ein schwacher Nachweispuls eingestrahlt, dessen relative Frequenz zwischen $\Delta\nu_N = -10 \text{ MHz}$ und $+40 \text{ MHz}$ verstimmt wird. Aus der transmittierten Intensität wird das Absorpti-

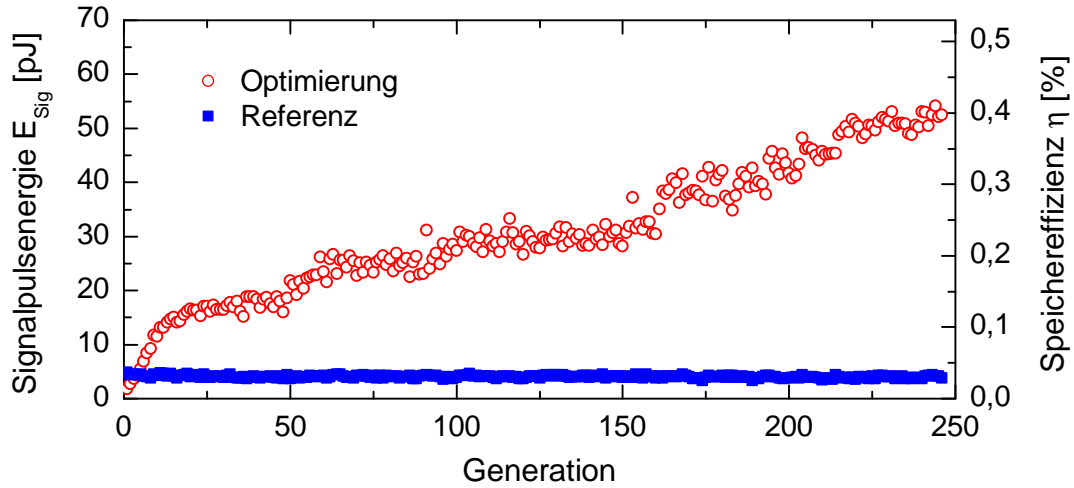


Abbildung 7.3: Anstieg des Lichtspeichersignals (○) während der Präparationsoptimierung mittels des EA unter ZEFOZ-Bedingungen. Die Referenz (■) wird in jeder Generation durch ein jeweils identisches Individuum ermittelt.

onsspektrum errechnet, welches in Abbildung 7.4 links dargestellt ist. Im Gegensatz zum entarteten Fall ($B = 0$) (s. auch Abb. 4.4 links) besitzt das optisch ermittelte Absorptionsspektrum unter dem Einfluss von \vec{B}_{opt} eine deutlich komplexe Struktur. Gründe hierfür sind die hohe Zahl von 2×36 statt nur 9 möglichen optischen Kopplungen innerhalb des inhomogen verbreiterten Übergangs $^3H_4 \leftrightarrow ^1D_2$, sowie die Komplexität des durch den EA ermittelten Frequenzverlaufs. Die Interpretation der optimierten Präparation gestaltet sich dementsprechend schwieriger.

Der Präparationspuls lässt sich in zwei Abschnitte unterteilen. Im ersten Teil (dunkelgrün hinterlegt in Abb. 7.2) variiert die Frequenz über ein vergleichsweise breites Intervall von $\Delta\nu_p \approx 0 \dots 25$ MHz. Hierdurch wird analog zur *spectral pit* (s. Kap. 4.1.3) ein ausgedehnter Bereich geringer Absorption erzeugt. Anschließend variiert die Frequenz im zweiten Teil des Pulses (hellgrün hinterlegt) über ein deutlich schmäleres Intervall ($\Delta\nu_p \approx 20,5 \dots 25,5$ MHz). Dies bewirkt einen selektives Rückpumpen in bestimmten Ensembles. Der anschließende Säuberungspuls, welcher eine konstante Frequenz von $\Delta\nu_{\text{Säub.}} = 2,8$ MHz aufweist, übernimmt nun die Rolle des Rückpumpimpulses.

Der optische Pumpprozess kann prinzipiell auf Basis einer Simulation (s. Anhang B) nachvollzogen werden (s. Abb. 7.4 links). Die folgende Diskussion beschränkt sich allerdings aufgrund der großen Zahl beteiligter Systeme auf lediglich ein einzelnes, für die Lichtspeicherung relevantes, Ensemble. Der Effekt des zweiten Präparationsschrittes sowie der Säuberung auf das unpräparierte Ensemble mit dem Ensembleparameter $\epsilon = 22,89$ MHz ist schematisch in Abbildung 7.4 rechts dargestellt. Durch einen doppelten Pumpprozess transferiert der Präparationspuls die Besetzung (blau Kugeln) in die Grundzustände $|+\frac{1}{2}\rangle$, $|-\frac{1}{2}\rangle$. Anschließend nutzt der Säuberungspuls zwei Übergänge nahezu identischer Frequenz, um diese Zustände zu entleeren und die Besetzung in die tieferliegenden Niveaus zu überführen. Das Ensemble wird somit zumindest teilweise in Zustand $|1\rangle$ präpariert, während Zustand $|3\rangle$, wie für EIT erforderlich, unbesetzt ist.

Die Besetzung des Zustands $|1\rangle$ im obigen Ensemble trägt zur Absorption auf

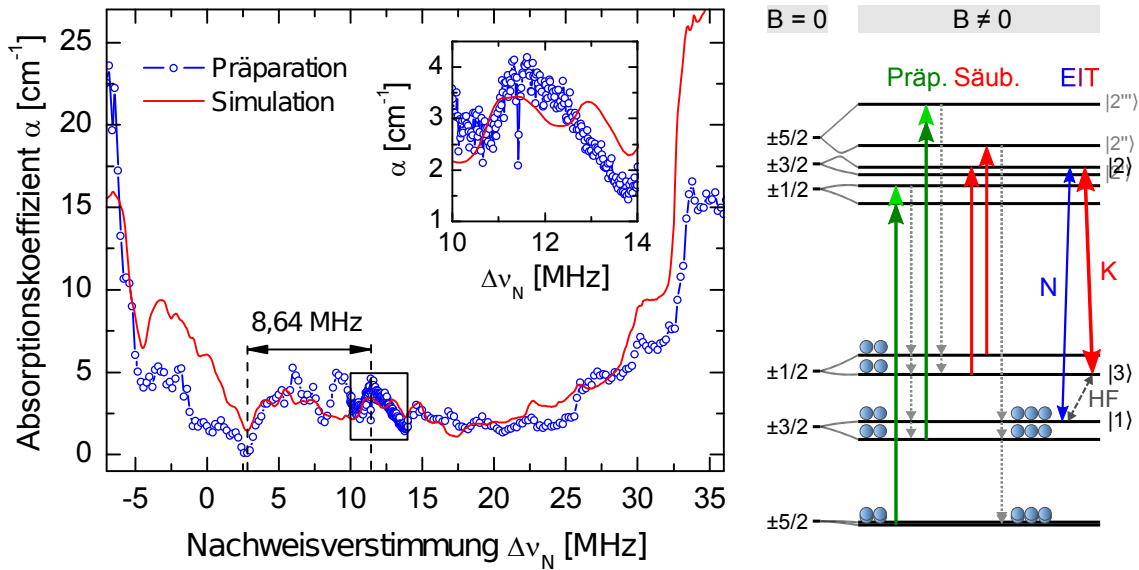


Abbildung 7.4: Links: Absorptionsspektrum nach der EA-optimierten Präparation sowie dem Säuberpuls (s. auch Abb. 7.2). Experimentelle Daten (\circ) werden mit einer Simulation ($-$) verglichen. Bei zusätzlichem Kontrollfeld, wird ein Absorptionseinbruch bei $\Delta\nu_N = 11,44$ MHz beobachtet (s. Ausschnitt). Rechts: Wirkung des zweiten Präparationschrittes und der Säuberung auf ein unpräpariertes, für EIT relevantes Ensemble.

dem Nachweisübergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ bei. Dies äußert sich im Spektrum durch das Absorptionsmaxima bei $\Delta\nu_N = 11,44$ MHz, dessen Position ebenfalls von der Simulation vorhergesagt wird (s. Abb. 7.4 links). Dabei ist zu beachten, dass zu diesem Absorptionsmaximum auch drei weitere Ensembles beitragen, welche ebenfalls in Grundzustand $|1\rangle$ präpariert wurden – in denen das Nachweisfeld aber resonant mit den angeregten Zuständen $|2'\rangle$, $|2''\rangle$, $|2'''\rangle$ ist (s. Abb. 7.4 rechts). Der EA präpariert also simultan insgesamt vier Λ -Systeme zur Lichtspeicherung.

Wird zeitgleich zum Nachweisfeld ein intensiver Kontrollpuls ($\Delta\nu_K = 2,8$ MHz) eingestrahlt, ergibt sich der erwartete Einbruch der Absorption auf der Nachweis-Resonanz ($\Delta\nu_N = 11,44$ MHz) aufgrund von EIT (s. Detailansicht in Abb. 7.4 links). Die Breite des Transmissionsfensters ist dabei mit $\Gamma_{\text{EIT}} \approx 35$ kHz deutlich schmaler als der Wert von $\Gamma_{\text{EIT}} \approx 200$ kHz ohne Einfluss eines externen statischen Magnetfeldes (s. Kap. 4.2). Dies deutet nach (2.24) auf höhere optische Dekohärenzraten γ_{12} hin und wirkt sich negativ auf die Speichereffizienz η aus.

Mit der Sequenz aus Abbildung 7.2 wird bei einer Speicherzeit von $\Delta t = 10$ ms eine Effizienz von lediglich $\eta = 0,38\%$ erreicht. Im Vergleich zu den Experimenten bei $B = 0$ ist diese somit um mehr als eine Größenordnung reduziert. Im Folgenden werden die wichtigsten Gründe hierfür motiviert (s. auch Kap. 2.3.4):

1. Der Absorptionskoeffizient von $\alpha \approx 4 \text{ cm}^{-1}$ auf der Resonanz ist deutlich kleiner als bei den Experimenten bei $B = 0$. Durch das externe Magnetfeld werden die Niveaus aufgespalten und in die zwei magnetischen Lagen A und B separiert. Im Vergleich zu $B = 0$ verringert sich hierdurch die Zahl der für EIT zu Verfügung stehenden Pr^{3+} -Ionen auf ein Viertel.
2. Die EIT-Bandbreite von $\Gamma_{\text{EIT}} \approx 35$ kHz ist deutlich schmaler als die Schwan-

kungen der Laserfrequenz im Bereich von $\Delta\nu_{\text{Flukt.}} \simeq 100 \text{ kHz}$. Dies führt zu inkohärenter Absorption bei nicht-resonanten Schreibprozessen sowie Pulsdeformation beim verstimmten Auslesen des Nachweispulses.

3. Um einen schnellen Ablauf des EA zu gewährleisten, wurde die Lichtspeicherung in einem gesättigten EIT-Regime durchgeführt: Durch eine verhältnismäßig große Nachweispulsfläche können Intensitätsfluktuationen des Signals minimiert werden, gleichzeitig verschlechtert sich aber auch die Effizienz. Durch eine einfache Reduktion von E_N konnte eine Verdopplung der Effizienz auf $\eta \approx 0,8\%$ experimentell nachgewiesen werden.
4. Der zeitliche Verlauf der Nachweis- und Kontroll-Pulsflanken ist noch nicht optimal gewählt. Diese können prinzipiell ebenfalls durch den EA optimiert werden [111]. In den hier präsentierten Experimenten wurde aber darauf verzichtet, um einen schnellen Fortschritt des EA zu gewährleisten.
5. Die räumliche Inhomogenität des HF-Magnetfeldes führt zu einer imperfekten Rephasierung. In hier nicht diskutierten Experimenten (an einem analogen Aufbau) wurde nachgewiesen, dass die Rephasierungseffizienz durch einen Kristall geringerer Dicke bzw. optimierter HF-Spulen erhöht werden kann.
6. Die Speichereffizienz wird durch die im Experiment genutzte Propagationsrichtung der Kontrollpulse beschränkt. Höhere Lichtspeichereffizienzen können mittels „rückwärtigem Auslesen“ erzielt werden [99].

7.3 Lichtspeicherung im externen Magnetfeld

Im vorigen Abschnitt wurde die EA-optimierte Präparation des komplexen Mediums zur Lichtspeicherung mittels EIT vorgestellt. Dazu wurde im Experiment die Güte der Individuen in einem EIT-Lichtspeicherexperiment getestet. Hierbei wurde lediglich die vergleichsweise moderate Speicherzeit von $\Delta t = 10 \text{ ms}$ genutzt. Im Folgenden soll nun die Abhängigkeit des Lichtspeichersignals von der Speicherzeit Δt untersucht werden. Dazu wird die durch den EA ermittelte Pulssequenz (s. Abb. 7.2) genutzt und die Speicherzeit bis in den Bereich mehrerer 100 ms erhöht. Simultan wird die zeitliche Position der zwei Rephasierungspulse angepasst.

Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 7.5 dargestellt. Wie erwartet ergibt sich aufgrund der Insensitivität des Speicherübergangs $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ gegenüber äußeren Störungen, infolge der ZEFOZ-Technik, ein verlangsamer Abfall des Lichtspeichersignals gegen die Speicherzeit Δt . Eine Regression (—) basierend auf dem Modell des Phasengedächtnisses stimmt sehr gut mit den experimentell ermittelten Daten (◦) überein und ergibt eine Kohärenzzeit von $T_2 = 331 \pm 7 \text{ ms}$.

Grundsätzlich erwartet man dieselbe Zerfallsdauer wie im Fall der Kohärenzcharakterisierung mittels Spinechos (s. Kap. 6.2.5). Die hier gefundene Kohärenzzeit ist allerdings etwas geringer, als der durch die Spinechos ermittelte Wert von 392 ms (s. Abb. 6.11). Diese leichte Diskrepanz kann darauf zurückgeführt werden, dass die Messungen nicht am selben Tag durchgeführt wurden. Die Umgebungsbedingungen im Labor (insb. Temperatur und statische elektrische Potentiale) variieren von Tag zu Tag. Dies wirkt sich auf die Steuerungselektronik aus, so dass sich die absolute Genauigkeit des Magnetfeldes minimal ändern kann. In Ka-

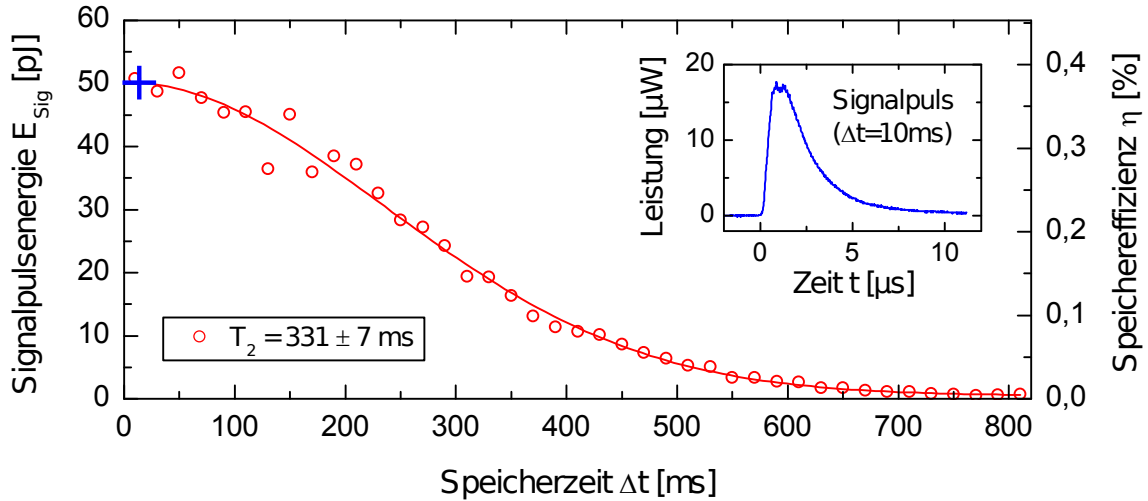


Abbildung 7.5: Lichtspeichersignal in Abhängigkeit der Speicherzeit Δt unter Einfluss von \vec{B}_{opt} . Experimentelle Daten (\circ) werden mit einer Regression ($-$) auf Basis des Modells des Phasengedächtnisses verglichen. Der Ausschnitt zeigt den Signalpuls bei $\Delta t = 10$ ms (+).

pitel 6.2.5 wurde gezeigt, dass Feldänderungen im Bereich von 1 % die Kohärenzzeit um mehr als eine Größenordnung ändern können. Die hier gemessene Diskrepanz wird also vermutlich durch eine Abweichung des Magnetfeldes von der optimierten Konfiguration von unter 0,1 % verursacht. Insgesamt konnte im Vergleich zur Kohärenzzeit von $T_2 \approx 500 \mu\text{s}$ bei $B = 0$, durch die Kombination von ZEFOZ-Technik und EA-optimierter Präparation, eine Steigerung der Lichtspeicherdauer um über einen Faktor 660 erzielt werden.

7.3.1 Dynamische Dekohärenzkontrolle und Bildspeicherung

Im letzten Schritt des Experiments wurde die ZEFOZ-Technik und die EA-optimierte Präparation mit DD kombiniert und zur Speicherung von Bildern mittels EIT angewandt. Hierbei wird die Rephasierungssequenz aus zwei π -Pulsen durch eine große Anzahl solcher π -Puls-Paare der Zyklusdauer τ_c ersetzt (s. auch Abb. 6.13). Um die Akkumulation von Pulsflächenfehlern zu minimieren, wird die Breitbandanpassung gegen die Einzelfrequenzimpedanzanpassung (s. Kap. 3.5.3) ausgetauscht, und HF- π -Pulse von lediglich $\tau_\pi = 4 \mu\text{s}$ Dauer generiert.

Abbildung 7.6 zeigt die Signalstärke des rücktransformierten Nachweispulses in Abhängigkeit der Speicherzeit Δt . Die Experimente wurden bei der optimierten ZEFOZ-Konfiguration $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215) \text{ G}$, unter Verwendung der EA-optimierten Präparation und DD für verschiedene Zykluszeiten $\tau_c = 100 \mu\text{s}$ (\circ), $\tau_c = 1 \text{ ms}$ (\circ), $\tau_c = 50 \text{ ms}$ (\circ) durchgeführt. Wie im Falle der Kohärenzcharakterisierung mittels Spinechos (s. Kap. 6.3), wird durch die dynamische Entkopplung eine deutliche Erhöhung der Lichtspeicherdauer bis in die Größenordnung von einer Minute detektiert. Für eine Zykluszeit von $\tau_c = 100 \mu\text{s}$ liefert eine exponentielle Regression ($-$) eine Kohärenzzeit von $T_2 = 42,3 \pm 2,6 \text{ s}$. Die Speichereffizienz wird dabei im Vergleich zu Abbildung 7.5 durch die große Anzahl von HF- π -Pulsen (bis zu zwei Millionen Pulse bei $\Delta t = 100 \text{ s}$) nur marginal beeinflusst. Dies deutet

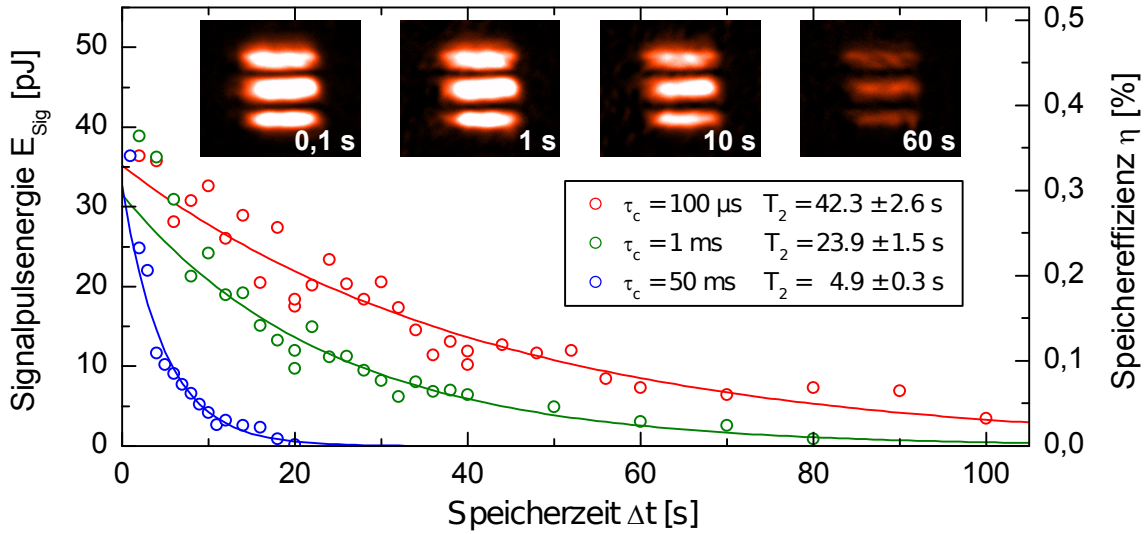


Abbildung 7.6: Licht- und Bildspeicherung mittels EIT unter ZEFOZ-Bedingungen, mit EA-optimierter Präparation und DD für verschiedene Zykluszeiten $\tau_c = 100 \mu\text{s}$ (\circ), $\tau_c = 1 \text{ ms}$ (\circ), $\tau_c = 50 \text{ ms}$ (\circ). Eine exponentielle Regression (—) liefert eine maximale Lichtspeicherdauer von $T_2 = 42,3 \text{ s}$. Die Bilder wurden mittels einer DD-Zykluszeit von $\tau_c = 100 \mu\text{s}$ gespeichert und nach Speicherzeiten von $\Delta t = 0,1 \text{ s}$, 1 s , 10 s und 60 s wieder ausgelesen.

auf eine sehr effiziente Entkopplung hin.

Die hier ermittelte Speicherzeit übertrifft die längste bisher bei der EIT-Lichtspeicherung – für einfache Pulse, d.h. keine Bilder – in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ gemessene Speicherzeit von $2,3 \text{ s}$ [189] um über einen Faktor 18. Im Vergleich dazu liegen typische Speicherdauern in warmen atomaren Gasen lediglich im Bereich von einigen $100 \mu\text{s}$ [15, 79]. Ebenso wurden bislang in ultrakalten Gasen keine höheren EIT-Speicherzeiten erzielt. In einem atomaren Mott-Isolator wurde eine EIT-Speicherzeit von $\sim 240 \text{ ms}$ [190], in einem Bose-Einstein-Kondensat eine Speicherzeit im Bereich einer Sekunde [191] beobachtet. Die bislang längste EIT-Speicherzeit von $\sim 16 \text{ s}$ wurde in ultrakalten Rubidiumatomen, welche in einem optischen Gitter präpariert wurden, gemessen [192]. Insgesamt stellen somit die im Rahmen der vorliegenden Arbeit präsentierten Ergebnisse die längste je mittels EIT, unabhängig vom Typ des Mediums, gemessene Speicherdauer dar [193].

Neben einfachen Lichtpulsen wurden im Experiment auch Bilder gespeichert. Hierzu wurde Maske 1 in Strahlengang Nachweis 1 eingebracht und dem Nachweispuls eine Struktur von drei horizontalen Streifen der Länge $100 \mu\text{m}$ aufgeprägt. Die Zyklusdauer der Entkopplungssequenz betrug dabei $\tau_c = 100 \mu\text{s}$. Abbildung 7.6 zeigt oben Bilder, welche nach Speicherzeiten von bis zu einer Minute wieder ausgelesen wurden. Selbst auf dieser langen Zeitskala kann die Struktur der drei Streifen einwandfrei identifiziert werden. Im Gegensatz zur EIT-getriebenen Bildspeicherung in gasförmigen Medien wird hier kein Verlust der transversalen Information infolge atomarer Diffusionsprozesse detektiert. Die im hier diskutierten Experiment erreichten Speicherzeiten von Bildern liegen damit um mehr als sechs Größenordnungen über den besten Ergebnissen zur EIT-Bildspeicherung in atomaren Gasen [26, 27, 133].

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die kohärente Speicherung von Licht mittels EIT in einem Praseodym-dotierten Yttrium-ortho-Silikat-Kristall untersucht. Ziel war die Realisierung eines EIT-getriebenen Festkörper-Speichers mit hoher Speicherkapazität und langer Speicherdauer. Hierzu wurde eine Vielzahl von Techniken eingesetzt, die in ihrer Kombination erstmalig Anwendung fanden. Um die Speicherkapazität zu erhöhen, wurde EIT mit Bildspeicherung und Multiplexing kombiniert. Um die Speicherzeit zu verlängern, wurden statische Magnetfelder zur Manipulation der Energieniveaus und Reduktion von Dekohärenz, sowie magnetische Wechselfelder zur Entkopplung der Zustände von der Umgebung verwendet. Zur optimalen Präparation der komplexen Niveaustrukturen wurde die rückkopplungsgesteuerte Pulsformung mit Hilfe evolutionärer Strategien genutzt.

Zunächst wurden EIT und Bildspeicherung im Festkörper bei Speicherzeiten implementiert, die durch Dephasierungsprozesse auf einige $10\,\mu\text{s}$ limitiert waren. Durch einfache Techniken zur Hochfrequenz-Rephasierung konnte die Speicherdauer um etwa einen Faktor 50 auf die Kohärenzzeit von $500\,\mu\text{s}$ gesteigert werden. Bei den Untersuchungen zeigten sich Oszillationen der Speichereffizienz mit der Speicherdauer. Diese entstanden durch simultane Speicherung der optischen Information in leicht zueinander verstimmtten Frequenzensembles, gefolgt von De- und Rephasierung. Dieser Effekt der Dunkelzustandsschwebung konnte erstmals in einem Festkörper nachgewiesen werden und schließlich mittels geeigneter, schwacher Magnetfelder kontrolliert bzw. unterdrückt werden. Hierdurch wurde die Speichereffizienz über die gesamte Speicherzeit maximiert [129]. Auch wurde erstmals die EIT-getriebene Bildspeicherung in einem Festkörper implementiert. Im Vergleich zur EIT-Bildspeicherung in Gasen, die durch atomare Diffusionsprozesse gestört wird, konnte die Speicherdauer sowie die Speicherkapazität in diesen ersten Experimenten bereits um mehr als einen Faktor 40 erhöht werden. Eine Abschätzung auf Basis des ermittelten Speichergebietes lässt eine vierstellige Zahl von Speicherpunkten in einem einzigen Kristall realistisch erscheinen [128].

Zur weiteren Erhöhung der Speicherkapazität wurde anschließend die EIT-Bildspeicherung mit Multiplexing-Verfahren aus der klassischen Holographie kombiniert. Dazu wurde das spektral selektive Frequenzmultiplexing, welches auf der Speicherung von Information in verschiedenen Frequenzklassen (Ensembles) von Ionen beruht, sowie das räumlich selektive Winkelmultiplexing, das Prinzipien der Phasen Anpassung zur Kontrolle der Richtung des emittierten Signalpulses nutzt, eingesetzt. Die Multiplexing-Verfahren erlaubten die simultane Speicherung von Bildern mittels EIT im selben Kristallvolumen. Ebenso wurden beide Techniken miteinander kombiniert, um die Speicherkapazität weiter zu erhöhen [139].

Im wichtigsten Teil der Arbeit sollten sehr lange EIT-Speicherzeiten durch Kontrolle und Unterdrückung von Dekohärenzprozessen mittels statischer und hochfrequenter Magnetfelder erreicht werden. Hierzu wurde ein supraleitendes Spulensystem entwickelt. Durch geeignete statische Felder kann die Hyperfeinstruk-

tur der Pr^{3+} -Ionen so manipuliert werden, dass Übergänge entstehen, die in erster Näherung insensitiv gegenüber äußeren Einflüssen sind. Bei diesen ZEFOZ-Konfigurationen lassen sich daher deutlich erhöhte Kohärenzzeiten bzw. EIT-Speicherzeiten erzielen. Allerdings bewirken die statischen Magnetfelder aufgrund des Zeeman-Effekts eine erheblich komplexere Niveaustuktur als im feldfreien Fall. Um diese zu charakterisieren, wurde die Raman-Heterodyn-Spektroskopie implementiert. Hiermit konnte die aufgespaltene HFS mit sehr hoher Präzision vermessen werden. Die optimale ZEFOZ-Konfiguration wurde durch ein automatisiertes Verfahren auf Basis von Spinecho-Messungen ermittelt, welches eine direkte Charakterisierung von Kohärenzzerfällen ermöglicht. Durch die ZEFOZ-Technik konnte so eine Steigerung der Kohärenzzeit von $500\,\mu\text{s}$ um fast drei Größenordnungen auf $392\,\text{ms}$ erzielt werden. Der ZEFOZ-Charakter der gefundenen Feldkonfiguration wurde mittels der RHS verifiziert.

Anschließend wurde die dynamische Dekohärenzkontrolle genutzt, um die Kohärenzzeit noch weiter zu verlängern. Hierbei wurden die Pr^{3+} -Ionen durch schnelle Folgen von hochfrequenten Magnetfeldpulsen (bis zu 20000 pro Sekunde) effektiv von der Umgebung entkoppelt. Dadurch konnte die Kohärenzzeit bis in den Bereich von einer Minute gesteigert werden. Dies stellt die längste je gemessene Kohärenzzeit in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ dar und erreicht die Zeitskala der natürlichen Lebensdauer von 100 s, die das ultimative Limit im dotierten Kristall definiert.

Schließlich wurden ZEFOZ-Technik und DD auf die EIT-getriebene Licht- und Bildspeicherung in $\text{Pr}:\text{YSO}$ angewandt. Aufgrund der Komplexität der Zeeman-aufgespaltenen HFS war eine einfache Präparation des Mediums für EIT nun nicht mehr möglich. Daher wurde auf ein Verfahren zurückgegriffen, welches ursprünglich im Bereich der Ultrakurzpulsphysik zur selbstoptimierenden Pulsformung entwickelt wurde. Ein evolutionärer Algorithmus sucht auf Basis biologischer Prinzipien nach einem optimalen Präparationspuls für die Lichtspeicherung. In den hier durchgeführten Experimenten wurde ein EA erstmals zur Präparation einer komplexen, Magnetfeld-aufgespaltenen und inhomogen verbreiterten Niveaustuktur angewandt. Die gefundene Pulssequenz ermöglichte die Lichtspeicherung und konnte qualitativ durch Simulationen erklärt werden. Um die Lichtspeicherdauer zu verlängern, wurde schließlich die DD eingesetzt. Die erreichte Speicherdauer von über 40 Sekunden stellt die längste je gemessene EIT-Speicherzeit dar. Zusätzlich konnte die EIT-Bildspeicherung auf diesen makroskopischen Zeitskalen demonstriert werden. Dies übertrifft vorherige Implementierungen der EIT-getriebenen Bildspeicherungen um über sechs Größenordnungen [193].

Im Rahmen des Gesamtprojekts konzentrieren sich die aktuellen Forschungen vor allem auf eine weitere Optimierung der Lichtspeicherung. So werden Entkopplungssequenzen auf Basis kompositer Pulse untersucht, um eine Steigerung der Speichereffizienz zu erzielen. Des Weiteren sollen die im Rahmen dieser Arbeit implementierten HF-Techniken in den optischen Bereich übertragen werden, um einen vollständig optischen Speicher zu realisieren. Experimentelle Verbesserungen zielen derzeit auf eine stabilere Strahlquelle auf Basis eines optisch parametrischen Oszillators. Ferner sollen in Zukunft auch grundlegend andere Techniken zur kohärenten Speicherung von Lichtpulsen (z.B. mittels atomaren Frequenzkämmen) oder auch andere Speichermedien (z.B. $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$) untersucht werden.

Abstract

This thesis deals with light storage via electromagnetically induced transparency (EIT) in a rare-earth-ion-doped crystal. EIT is a quantum interference effect which enables precise manipulation of the linear and non-linear optical properties of quantum systems. Besides allowing cancellation of absorption EIT also permits the preparation of media in a state of highly anomalous dispersion. This led to the surprising effects of “slow” and “stored light” which are nowadays well established techniques in the field of optical quantum-state storage. The main goal of the work reported in this thesis is the implementation of an EIT-driven memory for coherent light pulses with enhanced storage capacity and extremely long storage durations.

The experiments were performed in a special kind of solid—a yttrium orthosilicate crystal doped with praseodymium ions ($\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$). This medium offers the advantages of free atoms, i.e. spectrally narrow transitions and reduced interactions, while also providing high optical densities, good scalability and easy handling. Moreover, the absence of atomic diffusion in the solid medium allows spatially localized storage of large amounts of optical data.

In the first experiments to prolong the storage duration radio frequency magnetic pulses inverted varying phase evolutions of atomic coherences, which were initially prepared by the EIT light storage process. This extended the storage duration Δt from the pure dephasing time $T_{\text{deph}} \approx 10 \mu\text{s}$ to the coherence time $T_2 \approx 500 \mu\text{s}$. These investigations revealed prominent oscillations of the storage efficiency versus the storage duration. The light storage process took place in nearly degenerate level systems. This led to constructive and destructive interference of the atomic coherences which were finally mapped on the restored light field. This “dark state beating” was observed for the first time in a solid. By application of weak magnetic fields the oscillations could be controlled and finally completely suppressed which led to a maximized efficiency for each storage duration [129].

Chapter 5 reports of investigations on three different techniques to extend the storage capacity of the EIT-driven memory. The storage of light pulses with imprinted image information increased the storage density compared to all former experiments on EIT-driven image storage by more than a factor of 40. The presented results represent the first implementation of this concept in a solid [128]. Next, two techniques from classical holography were adapted to EIT-driven light storage. First, frequency multiplexing by EIT relies on simultaneous storage of light pulses in different ensembles of the inhomogeneously broadened medium. Second, angular multiplexing utilizes the phase matching of the applied laser fields to store information under different angles into the crystal. Both multiplexing techniques were implemented and combined with image storage. Moreover, a combination of both multiplexing techniques was demonstrated. This again increased the storage capacity of the EIT-driven memory [139].

The storage time in EIT-driven light storage is typically limited by decoherence. This obstacle can be overcome by application of external magnetic control-fields. For specific static magnetic fields, hyperfine transitions can be found whose transition frequency is – to first order – insensitive to external fluctuations. At such *zero first order Zeeman shift* (ZEFOZ) configurations, considerably longer coherence times of the relevant hyperfine-transitions can be observed. However, due to the Zeeman effect the external magnetic field also splits the levels and leads to a significantly more complex level structure. Hence, the medium was characterized by Raman heterodyne spectroscopy (RHS) with very high resolution. The optimal ZEFOZ-configuration was then determined by an automated search based on spin echo techniques. This procedure increased the coherence time from $T_2 \approx 500 \mu\text{s}$ to $T_{2,\text{opt}} = 392 \text{ ms}$. The ZEFOZ-character of the determined transition was verified by means of RHS. Finally, by decoupling the relevant quantum system from residual noise the coherence time was further extended. This technique – known as dynamical decoupling (DD) – relies on a sufficiently fast driving of the system such that perturbations of the environment are averaged out. The obtained T_2 -time of one minute represents the longest coherence time ever measured in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$.

The last chapter discusses applications of these magnetic field techniques to the EIT light storage protocol. As the Zeeman effect splits all levels, a simple analytic preparation of the medium is not possible anymore. Hence a technique, originally developed in ultra-short pulse physics, based on self-learning pulse shaping was applied. An evolutionary algorithm (EA) imitated the principles of evolutionary biology to efficiently search for an optimized preparation sequence prior to a light storage experiment. In this work an EA was applied to such a complex, Zeeman-split and inhomogeneously broadened level structure for the first time. The EA found a solution, i.e. an optimized preparation pulse sequence which enabled light storage at ZEFOZ-conditions. The effect of the optimized pulse on the medium could be explained by comparison with numeric simulations.

The final step towards extremely long light storage times relied on dynamical decoupling via RF driving pulses. By application of 20000 π -pulses per second, the EIT-storage time could be extended above 40 seconds. This represents the longest ever observed storage duration in any EIT experiment and any medium. The storage duration approaches the ultimate time scale of the population lifetime of the relevant hyperfine states of $T_1 \sim 100 \text{ s}$. To demonstrate the full potential of the presented concept, the experiment on long-term light storage was finally combined with image storage. Even after one minute the images could be retrieved with high contrast and no observable degradation of their structure. This outperforms all former experiments on EIT-driven image-storage with maximal storage durations in the range of $10 \mu\text{s}$ by more than six orders of magnitude [193].

Anhang A

Spektroskopische Parameter zur Berechnung der Hyperfeinstruktur

Die in Kapitel 6 präsentierte Zeeman-Spektren (s. Abb. 6.2) wurden mit berechneten Werten, welche auf dem in Kapitel 1.3.2 eingeführten Formalismus basieren, verglichen. Für die Herleitung des effektiven Quadrupoltensors \hat{Q} und des effektiven Zeeman-Tensors \hat{M} sind dabei Rotationsmatrizen R notwendig, welche nach der zyz -Konvention mit den Eulerwinkeln α , β , γ durchgeführt werden:

$$R(\alpha, \beta, \gamma) = \begin{pmatrix} \cos \gamma & \sin \gamma & 0 \\ -\sin \gamma & \cos \gamma & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \cos \beta & 0 & -\sin \beta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \beta & 0 & \cos \beta \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \cos \alpha & \sin \alpha & 0 \\ -\sin \alpha & \cos \alpha & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.1})$$

Ebenso sind zur Berechnung der Hyperfeinstruktur die entsprechenden spektroskopischen Parameter notwendig. In der vorliegenden Arbeit wird der Parametersatz von Lovrić *et al.* verwendet [50]:

Tabelle A.1: Spektroskopische Parameter der Hyperfeinstruktur in Pr:YSO für den Grundzustand 3H_4 und den ersten angeregten Zustand 1D_2 nach [50].

Parameter	Grundzustand	angeregter Zustand	Einheit
D	-4,4435	1,35679	MHz
E	-0,56253	0,42192	MHz
α_Q	62,1	123,51	°
β_Q	31,81	94,69	°
γ_Q	93,94	170,56	°
g_x	2,657	1,454	kHz/G
g_y	3,101	1,430	kHz/G
g_z	11,308	3,376	kHz/G
α_M	112,0	44,0	°
β_M	35,68	63,91	°
γ_M	101,54	3,0	°
α_{C_2}	110,0	120,0	°
β_{C_2}	1,574	1,65	°

Hierdurch können alle Hyperfeinübergänge für gegebene externe Magnetfelder berechnet werden. Abbildung A.1 zeigt exemplarisch eine aus den obigen Daten ermittelte Simulation des absoluten Gradienten $|\partial \nu / \partial B|$ der Hyperfeinresonanz

$|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ (s. Abb. 7.4 rechts) gegen ein externes Magnetfeld. Das Magnetfeld wurde dabei analog zu Abbildung 6.12 in einem Bereich von jeweils 500 G um das in Kapitel 6.2.5 optimierte ZEFOZ-Feld $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215)$ G variiert. Die Schnittebenen sind jeweils durch die entsprechende Feldkomponente definiert, so dass der ZEFOZ-Punkt im Zentrum liegt. Deutlich ist die Überlagerung der Bereiche mit besonders niedriger Feldabhängigkeit im Schnittpunkt zu erkennen. Die hier ermittelte Zeeman-Verschiebung erster Ordnung beträgt bei der optimierten Konfiguration lediglich $|\partial\nu/\partial B| = 1,2$ kHz/G.

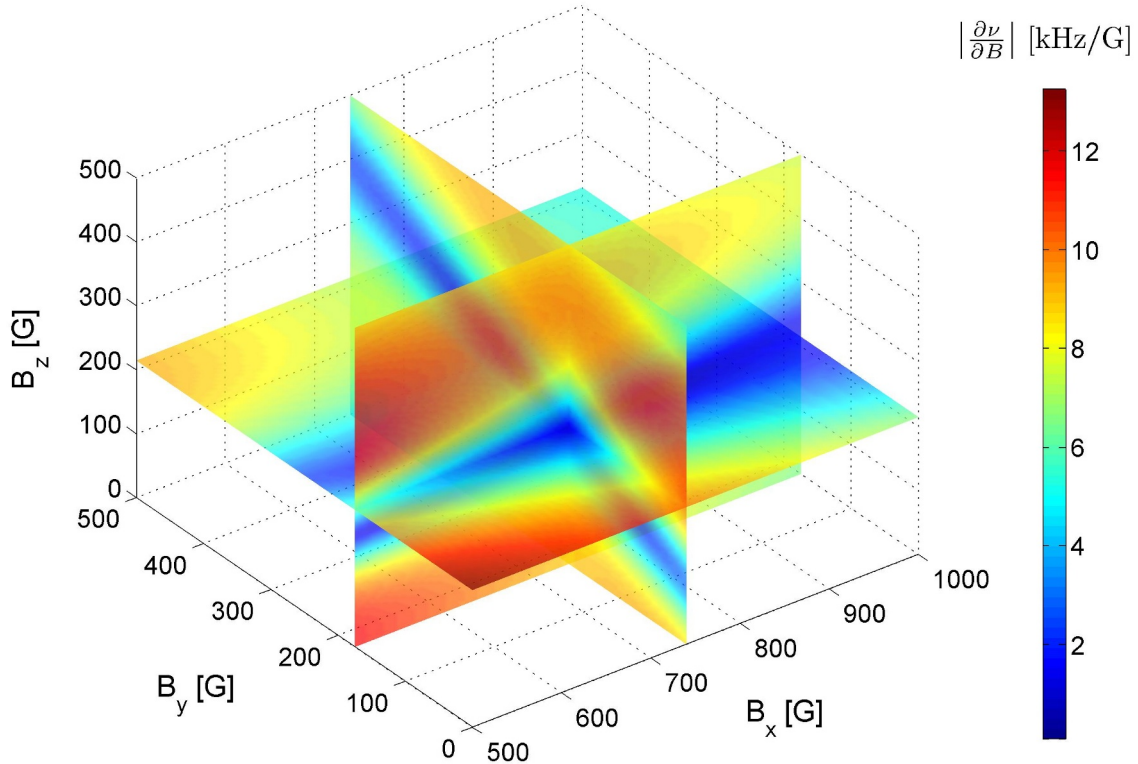


Abbildung A.1: Berechneter Gradient $|\partial\nu/\partial B|$ des Hyperfeinübergangs $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ ($\Delta\nu_{HF} = 8,64$ MHz) im Feldbereich $B_x = 500 \dots 1000$ G, $B_y = 0 \dots 500$ G und $B_z = 0 \dots 500$ G. Die Schnittebenen schneiden sich am optimierten ZEFOZ-Punkt $\vec{B}_{opt} = (741; 177; 215)$ G, an dem die geringste Abhängigkeit der Resonanzfrequenz vom Magnetfeld beobachtet wird.

Anhang B

Simulation des optischen Pumpens

In Kapitel 4 und 7 wird die Präparation des Pr:YSO-Kristalls durch verschiedene Pulssequenzen vorgestellt. Um die Wirkung der Präparationspulse auf das Medium zu untersuchen, werden Absorptionsspektren aufgenommen, welche mit simulierten Spektren basierend auf optischem Pumpen (s. auch Kap. 4.1.1) verglichen werden. Diese Simulationen basieren auf einem semi-klassischem Ratengleichungsmodell, welches in Kooperation mit A. Romanenko (Univ. Kiev) entwickelt und als Programmcode implementiert wurde. Im Folgenden wird dieses Modell kurz vorgestellt.

Die einzelnen Hyperfeinzustände des Mediums werden durch den Multiindex $A = (a, \sigma)$ bezeichnet, wobei $a = \overline{1, 3}$ für den Grundzustand 3H_4 und $a = \overline{4, 6}$ für den angeregten Zustand 1D_2 steht. Die Aufspaltung der Niveaus im Magnetfeld wird durch $\sigma = \pm$ berücksichtigt. In dieser Notation ergibt sich der Wechselwirkungsoperator in Drehwellennäherung (RWA) zu:

$$\hat{H}_{RWA} = \hbar \begin{pmatrix} \Delta_{\tilde{1}} & 0 & 0 & & & \\ 0 & \Delta_{\tilde{2}} & 0 & \boxed{\Omega/2} & & \\ 0 & 0 & \Delta_{\tilde{3}} & & & \\ & \boxed{\Omega/2} & & \Delta_{\tilde{4}} & 0 & 0 \\ & & & 0 & \Delta_{\tilde{5}} & 0 \\ & & & 0 & 0 & \Delta_{\tilde{6}} \end{pmatrix}$$

Hierbei zeigen die Tilden beide Werte σ eines Multiindexes desselben Zustandes a an. Die Einträge von \hat{H}_{RWA} sind 2×2 Blöcke mit

$$\Delta_A = \begin{pmatrix} \Delta_{a,+} & 0 \\ 0 & \Delta_{a,-} \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \Omega_{AB} = \begin{pmatrix} \Omega_{ab,++} & \Omega_{ab,+-} \\ \Omega_{ab,-+} & \Omega_{ab,--} \end{pmatrix}.$$

Ohne externes Magnetfeld gilt $\tilde{1} = 1$ und die Diagonalelemente können wie folgt gewählt werden:

$$\Delta_1 = -\delta_{21} - \Delta_N, \quad \Delta_2 = -\Delta_N, \quad \Delta_3 = \delta_{32} - \Delta_N, \quad \Delta_4 = -\delta_{54}, \quad \Delta_5 = 0, \quad \Delta_6 = \delta_{65}$$

Hierbei ist Δ_N die Verstimmung des Nachweisfeldes vom Übergang $2 \leftrightarrow 5$:

$$\Delta_N = \omega_N - \omega_{52}$$

Ist das Magnetfeld ungleich Null, werden die Verstimmungen relativ zu den Zuständen 2 bzw. 5 ohne externes Feld berechnet.

Die Wechselwirkung der Laserfelder auf das Medium kann dann mittels der Liouville-von-Neumann-Gleichung (2.16) beschrieben werden:

$$i\hbar\dot{\rho} = [\hat{H}, \rho]$$

Betrachtet man lediglich die optischen Kohärenzen, so ergibt sich für die Populationen:

$$\dot{\rho}_{AA} = \sum_{B=\bar{4}}^{\bar{6}} \text{Im}(\Omega_{AB}\rho_{BA}) \quad \text{für } A = \bar{1}, \bar{3} \quad \text{und} \quad \dot{\rho}_{AA} = \sum_{B=\bar{1}}^{\bar{3}} \text{Im}(\Omega_{AB}\rho_{BA}) \quad \text{für } A = \bar{4}, \bar{6}$$

Für die optischen Kohärenzen gilt mit $A = \bar{4}, \bar{6}$ und $B = \bar{1}, \bar{3}$:

$$\dot{\rho}_{AB} = -i(\Delta_A - \Delta_B)\rho_{AB} + \frac{i\Omega_{AB}}{2}(\rho_{BB} - \rho_{AA})$$

Der Kohärenzzerfall erfolgt dabei mit der Dekohärenzrate γ_2 :

$$[\dot{\rho}_{AB}]_{dec} = -\gamma_2\rho_{AB}$$

Der Populationszerfall der angeregten Zustände erfolgt mit der Rate Γ_1 :

$$[\dot{\rho}_{AA}]_{dec} = -\Gamma_1\rho_{AA} \quad \text{für } A = \bar{4}, \bar{6}$$

Für die Grundzustände gilt somit:

$$[\dot{\rho}_{AA}]_{dec} = \Gamma_1 \sum_{B=\bar{4}}^{\bar{6}} q_{AB}\rho_{BB} \quad \text{für } A = \bar{1}, \bar{3}$$

Hierbei sind q_{AB} Faktoren, welche beschreiben, wie die Populationen in die Grundzustände zerfallen. Da die Oszillatorstärken aus den spektroskopischen Parametern (s. Anhang A) nicht absolut eindeutig berechnet werden können, wurde ein Mischungsparameter p eingeführt, welcher eine Überlagerung von Oszillatorstärken $[q_{AB}]_f$ und gleichverteiltem Zerfall $[q_{AB}]_{1/6}$ zulässt:

$$q_{AB} = p[q_{AB}]_f + (1-p)[q_{AB}]_{1/6}, \quad \text{mit } 0 \leq p \leq 1$$

In der Raten-Näherung gilt für die optischen Kohärenzen:

$$\rho_{AB} = \frac{i\Omega_{AB}}{2} \frac{\rho_{BB} - \rho_{AA}}{\gamma_2 + i\Delta_{AB}}$$

Aus dem Ansatz

$$\dot{\rho}_{AA} = [\dot{\rho}_{AA}]_{dec} + [\dot{\rho}_{AA}]_{\Omega}$$

ergibt sich somit für die Grundzustände:

$$\dot{\rho}_{AA} = [\dot{\rho}_{AA}]_{dec} + \frac{1}{2} \sum_{B=\tilde{4}}^{\tilde{6}} \frac{\gamma_2 |\Omega_{AB}|^2}{\gamma_2^2 + \Delta_{BA}^2} (\rho_{AA} - \rho_{BB}), \quad A = \overline{\tilde{1}, \tilde{3}}$$

wobei $\Delta_{AB} = \Delta_A - \Delta_B$ ist. Analoges gilt für die angeregten Zustände:

$$\dot{\rho}_{AA} = [\dot{\rho}_{AA}]_{dec} + \frac{1}{2} \sum_{B=\tilde{1}}^{\tilde{3}} \frac{\gamma_2 |\Omega_{AB}|^2}{\gamma_2^2 + \Delta_{BA}^2} (\rho_{AA} - \rho_{BB}), \quad A = \overline{\tilde{4}, \tilde{6}}$$

Dieses System aus gekoppelten Differentialgleichungen beschreibt die Populationsänderungen im hier modellierten Medium unter Einfluss eines äußeren Strahlungsfeldes. Zur Lösung dieses Problems werden numerische Methoden basierend auf den Runge-Kutta-Fehlberg-Verfahren (RKF45) sowie andere Programmpakete (LSODA) eingesetzt.

Um den linearen Absorptionskoeffizient α_{lin} zu berechnen, wird ein schwaches Nachweisfeld angenommen. Der Absorptionskoeffizient kann dann für jeden Übergang bzw. Verstimmung Δ_N in jedem Ensemble ϵ separat berechnet werden:

$$\alpha_{lin}(\epsilon, \Delta_N) = \text{const} \cdot \text{Re} \sum_{A=\tilde{1}}^{\tilde{3}} \sum_{B=\tilde{4}}^{\tilde{6}} \frac{\rho_{AA}(\epsilon) - \rho_{BB}(\epsilon)}{\gamma_2 + i [\Delta_B(\Delta_N) - \Delta_A(\Delta_N)]}$$

Dabei entspricht jeder Summand dem Absorptionskoeffizient eines Zweiniveausystems $A \leftrightarrow B$. Der gesamte Absorptionskoeffizient für eine inhomogene Verteilung $F(\epsilon) \sim e^{-\epsilon^2/\Gamma_{inh}^2}$ ist dann durch

$$\alpha_{lin}(\Delta_N) = \int_{-\infty}^{+\infty} F(\epsilon) \alpha_{lin}(\epsilon, \Delta_N) d\epsilon$$

gegeben.

Anhang C

Rephasierung im Vierniveausystem

In Kapitel 4.3 wird die Rephasierung der mittels EIT präparierten Grundzustandskohärenzen in Pr:YSO vorgestellt. Durch diese Technik kann die Lichtspeicherzeit zwar deutlich erhöht werden, allerdings werden dadurch auch störende Oszillationen der Speichereffizienz gegen die Speicherdauer sichtbar. Die Ursache der Oszillationen liegt in der Kreuzkopplung der beteiligten Grundzustands-Hyperfeinniveaus durch die verwendeten Hochfrequenz-Rephasierungspulse. Um diesen Effekt genauer zu beschreiben, wurde in Kooperation mit *L. P. Yatsenko* (Institut für Physik, Ukrainische Akademie der Wissenschaften, Kiew) die Rephasierung im effektiven Vierniveausystem der Grundzustands-Hyperfeinniveaus modelliert. Das Modell basiert auf den in Kapitel 2 eingeführten Formalismen und wird im Folgenden vorgestellt.

C.1 Das effektive Vierniveausystem

Das zur Lichtspeicherung relevante Niveausystem ist in Abbildung C.1 dargestellt. Aufgrund von Hintergrundmagnetfeldern sind die Hyperfeinniveaus Zeemanaufgespalten, so dass durch den Lichtspeicherprozess pro magnetischer Lage jeweils vier Grundzustandskohärenzen präpariert werden (grün gestrichelte Pfeile).

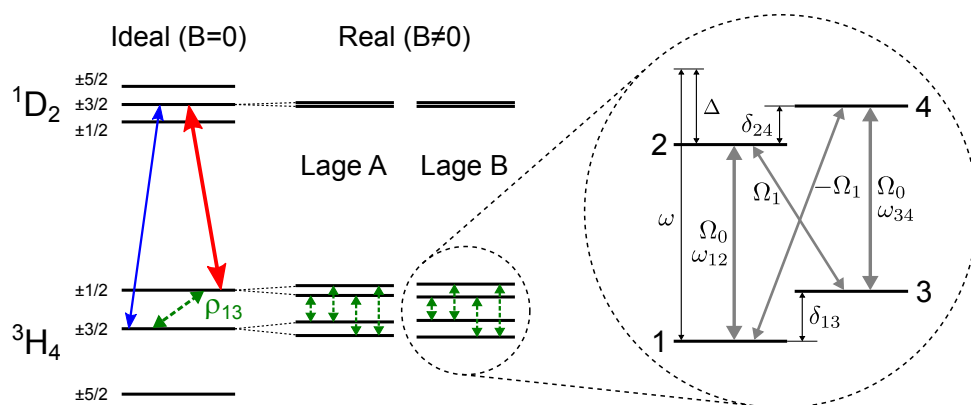


Abbildung C.1: Niveausystem in Pr:YSO. Unter realen Bedingungen ($B \neq 0$) sind die Hyperfeinniveaus Zeeman-aufgespalten. Mittels EIT können daher jeweils vier unterschiedliche Kohärenzen pro magnetischer Lage A oder B präpariert werden. Der Ausschnitt rechts zeigt die Kopplungen der Hochfrequenzrephasierungspulse im effektiven Grundzustands-Vierniveausystem einer magnetischen Lage.

Während des Rephasierungsprozesses wechselwirken zwei Hochfrequenz- π -Pulse mit den präparierten Kohärenzen, um deren Phase zu invertieren (s. Kap. 4.3). Die Kopplung eines solchen HF- π -Pulses an das effektive Vierniveausystem der beteiligten Grundzustands-Hyperfeinniveaus ist exemplarisch für die magnetische Lage B in Abbildung C.1 rechts gezeigt.

Das effektive Vierniveausystem besteht aus zwei energetisch tieferliegenden Niveaus 1 und 3 mit dem Frequenzabstand δ_{13} sowie zwei energetisch höher gelegenen Niveaus 2 und 4 mit dem Frequenzabstand δ_{24} . Die Kopplungen der Niveaus durch einen breitbandigen HF-Puls sind durch graue Pfeile symbolisiert. Aufgrund der Symmetrie des Problems können die Absolutwerte der Rabi-Frequenzen der Übergänge $1 \leftrightarrow 2$ und $3 \leftrightarrow 4$ als identisch angenommen werden: $\left| \frac{\mu_{12}^{\mathcal{E}}}{\hbar} \right| = \left| \frac{\mu_{34}^{\mathcal{E}}}{\hbar} \right| = \Omega_0$. Des Weiteren kann Ω_0 durch geeignete Phasenwahl der atomaren Eigenzustände als reell und positiv angenommen werden. Aufgrund der Orthogonalität der Eigenzustände sind die Rabi-Frequenzen der Übergänge $1 \leftrightarrow 4$ und $3 \leftrightarrow 2$ zwar ebenfalls gleich im Betrag, aber unterschiedlich im Vorzeichen: $\frac{\mu_{14}^{\mathcal{E}}}{\hbar} = -\frac{\mu_{32}^{\mathcal{E}}}{\hbar} = \Omega_1$. In dieser Konfiguration kann das System durch eine effektive Rabi-Frequenz

$$\Omega = \sqrt{\Omega_0^2 + \Omega_1^2} \quad (\text{C.1})$$

beschrieben werden. Der HF-Puls besitzt die Zentralfrequenz ω , welche um $\Delta = \omega - \omega_{12}$ vom Übergang $1 \leftrightarrow 2$ verstimmt ist.

C.2 Wechselwirkung eines HF-Pulses mit dem effektiven Vierniveausystem

Im Folgenden wird die Wechselwirkung eines kurzen, d.h. breitbandigen, HF-Pulses mit dem effektiven Vierniveausystem betrachtet. Die vier zeitabhängigen Wahrscheinlichkeitsamplituden des Systems $\{c_1(t), c_2(t), c_3(t), c_4(t)\}$ seien im vierkomponentigen Zustandsvektor $\mathbf{C}(t)$ zusammengefasst, welcher der zeitabhängigen Schrödingergleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{C}(t) = -i \hat{H}_{RWA}(t) \mathbf{C}(t) \quad (\text{C.2})$$

gehört. Hierbei ist $\hat{H}_{RWA}(t)$ die 4×4 Hamilton-Matrix in Drehwellennäherung:

$$\hat{H}_{RWA} = \begin{bmatrix} 0 & \frac{\Omega_0}{2} & 0 & \frac{\Omega_1}{2} \\ \frac{\Omega_0}{2} & -\Delta & -\frac{\Omega_1}{2} & 0 \\ 0 & -\frac{\Omega_1}{2} & \delta_{13} & \frac{\Omega_0}{2} \\ \frac{\Omega_1}{2} & 0 & \frac{\Omega_0}{2} & -\Delta + \delta_{24} \end{bmatrix} \quad (\text{C.3})$$

Die Bandbreite des HF-Pulses sei deutlich größer als die Verstimmung Δ sowie die Aufspaltungen δ_{13} und δ_{24} .¹ Die Lösung der Gleichung (C.2) kann dann folgendermaßen geschrieben werden:

$$\mathbf{C}(t_f) = \mathbf{U} \mathbf{C}(t_i) \quad (\text{C.4})$$

¹Diese Voraussetzung ist aufgrund der kurzen Zeitdauer eines typischen HF- π -Pulses von unter $10 \mu\text{s}$ und Hintergrund-Aufspaltungen δ_{13} , δ_{24} von weniger als 10 kHz gut erfüllt.

wobei t_i und t_f den Start- und Endzeitpunkt des HF-Pulses bezeichnen. Die 4×4 Evolutions-Matrix U lautet:

$$U = \begin{bmatrix} \cos \frac{\mathcal{A}}{2} & -i \cos \alpha \sin \frac{\mathcal{A}}{2} & 0 & -i \sin \alpha \sin \frac{\mathcal{A}}{2} \\ -i \cos \alpha \sin \frac{\mathcal{A}}{2} & \cos \frac{\mathcal{A}}{2} & i \sin \alpha \sin \frac{\mathcal{A}}{2} & 0 \\ 0 & i \sin \alpha \sin \frac{\mathcal{A}}{2} & \cos \frac{\mathcal{A}}{2} & -i \cos \alpha \sin \frac{\mathcal{A}}{2} \\ -i \sin \alpha \sin \frac{\mathcal{A}}{2} & 0 & -i \cos \alpha \sin \frac{\mathcal{A}}{2} & \cos \frac{\mathcal{A}}{2} \end{bmatrix} \quad (C.5)$$

mit

$$\sin \alpha = \frac{\Omega_1}{\Omega}, \quad \cos \alpha = \frac{\Omega_0}{\Omega}, \quad (C.6)$$

$$\Omega = \sqrt{\Omega_0^2 + \Omega_1^2} \quad (C.7)$$

Die Pulsfläche \mathcal{A} ist als das Integral der effektiven Rabi-Frequenz Ω definiert:

$$\mathcal{A} = \int_{t_i}^{t_f} \Omega(t) dt \quad (C.8)$$

Beispiele

Wechselwirkung mit einem π -Puls

Im Zweiniveausystem invertiert ein Puls der Pulsfläche $\mathcal{A} = \pi$ das System:

$$c_1(t_f) = -ic_2(t_i), \quad c_2(t_f) = -ic_1(t_i) \quad (C.9)$$

Im Vierniveausystem ergeben sich die finalen Wahrscheinlichkeitsamplituden als kohärente Superposition der anfänglichen Amplituden:

$$\begin{aligned} c_1(t_f) &= -i \cos \alpha c_2(t_i) - i \sin \alpha c_4(t_i) \\ c_3(t_f) &= i \sin \alpha c_2(t_i) - i \cos \alpha c_4(t_i) \\ c_2(t_f) &= -i \cos \alpha c_1(t_i) + i \sin \alpha c_3(t_i) \\ c_4(t_f) &= -i \sin \alpha c_1(t_i) - i \cos \alpha c_3(t_i) \end{aligned} \quad (C.10)$$

Diese Abhängigkeiten beschreiben Interferenzen zwischen den einzelnen Amplituden, welche letzten Endes zur Oszillation des Lichtspeichersignals führen.

Wechselwirkung mit einem 2π -Puls

Die Wirkung eines 2π -Pulses im Zwei- bzw. Vierniveausystem ist vergleichbar. Im Vierniveausystem werden lediglich die Vorzeichen der Wahrscheinlichkeitsamplituden geändert:

$$c_n(t_f) = -c_n(t_i) \quad (C.11)$$

Freie Evolution

Ohne externes HF-Feld entwickelt sich das System ungestört und wird durch den Hamiltonoperator

$$\hat{H}_{frei} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\Delta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \delta_{13} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\Delta + \delta_{24} \end{bmatrix} \quad (C.12)$$

beschrieben. Die zugehörige Evolutions-Matrix U_{frei} lautet:

$$U_{frei}(t_f, t_i) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{i\Delta(t_f-t_i)} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i\delta_{13}(t_f-t_i)} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{i(\Delta-\delta_{24})(t_f-t_i)} \end{bmatrix} \quad (C.13)$$

C.3 Polarisation nach der Rephasierungssequenz

Im Folgenden wird die im Medium vorliegende Polarisation zum Zeitpunkt $t = T \equiv \Delta t$, d.h. nach einem vollen Rephasierungszyklus, berechnet. Die Rephasierungssequenz ist in Abbildung 4.7 skizziert und besteht aus folgenden Schritten. Zum Zeitpunkt $t = 0$ wird durch Kontroll- und Nachweispuls eine Kohärenz generiert. Dies ist äquivalent zur Kohärenzerzeugung mittels eines $\pi/2$ -Pulses. Zum Zeitpunkt $t = T/4$ invertiert der erste π -Puls das System, zum Zeitpunkt $t = 3T/4$ der zweite. Im idealen Zweiniveausystem sind die Kohärenzen nach der Speicherzeit $T = \Delta t$ wieder in Phase, so dass eine hohe Polarisation, d.h. eine hohe Signalstärke vorliegt. Im hier betrachteten Vierniveausystem ist die Evolution der Kohärenzen aufgrund der Interferenzterme (C.10) jedoch komplizierter.

Im Folgenden wird davon ausgegangen, dass vor dem Speicherprozess Zustand 1 und 3 gleichermaßen besetzt sind und zwischen diesen keine anfängliche Kohärenz vorliegt. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit kann die Berechnung der Polarisation daher für beide Fälle separat durchgeführt werden. Zuerst wird der Fall betrachtet, dass sich das System zum Zeitpunkt $t = 0$ im Zustand 1 befindet:

$$c_1(0) = 1, c_2(0) = c_3(0) = c_4(0) = 0 \quad (C.14)$$

Kohärenzerzeugung durch den $\pi/2$ -Puls

Nach der Wechselwirkung mit dem $\pi/2$ -Puls zum Zeitpunkt $t = t_1 = 0$ sind die Wahrscheinlichkeitsamplituden durch

$$\begin{aligned} c_1(t_1) &= \frac{\sqrt{2}}{2}, \\ c_2(t_1) &= -i \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2}, \\ c_3(t_1) &= 0, \\ c_4(t_1) &= -i \sin \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} \end{aligned} \quad (C.15)$$

gegeben. Hieraus folgt die Polarisation $P_0 = \mu_{12}c_1(t_1)c_2^*(t_1) + \mu_{14}c_1(t_1)c_4^*(t_1) + \mu_{32}c_3(t_1)c_2^*(t_1) + \mu_{34}c_3(t_1)c_4^*(t_1)$, welche sich zu

$$P_0 = \mu_{12} \frac{\sqrt{2}}{2} i \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} + \mu_{14} \frac{\sqrt{2}}{2} i \sin \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} = i \frac{\mu_0}{2} \quad (\text{C.16})$$

ergibt. Dabei ist $\mu_0 = \sqrt{\mu_{12}^2 + \mu_{14}^2}$ das effektive Dipolübergangsmoment.

Freie Evolution zwischen $\pi/2$ -Puls und erstem π -Puls

Nach der ungestörten Evolution von $t = t_1$ nach $t = t_2 = T/4$, d.h. vor dem ersten π -Puls, sind die Wahrscheinlichkeitsamplituden durch

$$\begin{aligned} c_1(t_2) &= \frac{\sqrt{2}}{2}, \\ c_2(t_2) &= -i \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} \exp[i\Delta T/4], \\ c_3(t_2) &= 0, \\ c_4(t_2) &= -i \sin \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} \exp[i(\Delta - \delta_{24})T/4] \end{aligned} \quad (\text{C.17})$$

gegeben. Der Dephasierungsprozess wird dabei durch die Exponentialterme $\exp[i\Delta T/4]$ und $\exp[i(\Delta - \delta_{24})T/4]$ beschrieben.

Wechselwirkung mit dem ersten π -Puls

Nach der Wechselwirkung mit dem ersten π -Puls sind die Wahrscheinlichkeitsamplituden durch

$$\begin{aligned} c_1(t_3) &= -\frac{\sqrt{2}}{2} \exp[i\Delta T/4] [\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha \exp(-i\delta_{24}T/4)], \\ c_2(t_3) &= -i \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2}, \\ c_3(t_3) &= \sin \alpha \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} \exp[i\Delta T/4] (1 - \exp[-i\delta_{24}T/4]), \\ c_4(t_3) &= -i \sin \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} \end{aligned} \quad (\text{C.18})$$

gegeben.

Freie Evolution nach dem ersten π -Puls

Nach der Wechselwirkung mit dem ersten π -Puls entwickelt sich das System ungestört bis zum Zeitpunkt $t_4 = 3T/4$. Die Wahrscheinlichkeitsamplituden zu diesem

Zeitpunkt lauten:

$$\begin{aligned}
c_1(t_4) &= -\frac{\sqrt{2}}{2} \exp[i\Delta T/4] [\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha \exp(-i\delta_{24}T/4)], \\
c_2(t_4) &= -i \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} \exp[i\Delta T/2], \\
c_3(t_4) &= \sin \alpha \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} \exp[i\Delta T/4] \exp[-i\delta_{13}T/2] (1 - \exp[-i\delta_{24}T/4]), \\
c_4(t_4) &= -i \sin \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} \exp[i\Delta T/2] \exp[-i\delta_{24}T/2] \tag{C.19}
\end{aligned}$$

Wechselwirkung mit dem zweiten π -Puls

Nach der Wechselwirkung mit dem zweiten π -Puls lauten die Wahrscheinlichkeitssamplituden:

$$\begin{aligned}
c_1(t_5) &= -\frac{\sqrt{2}}{2} [\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha \exp(-i\delta_{24}T/2)] \exp[i\Delta T/2], \\
c_2(t_5) &= i \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} [\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha (\exp[-i\delta_{24}T/4] + \exp[-i\delta_{13}T/2] \\
&\quad - \exp[-i\delta_{13}T/2 - i\delta_{24}T/4])] \exp[i\Delta T/4], \\
c_3(t_5) &= \sin \alpha \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} (1 - \exp[-i\delta_{24}T/2]) \exp[i\Delta T/2], \\
c_4(t_5) &= i \sin \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} [\cos^2 \alpha (1 - \exp[-i\delta_{13}T/2] + \exp[-i\delta_{13}T/2 - i\delta_{24}T/4]) \\
&\quad + \sin^2 \alpha \exp(-i\delta_{24}T/4)] \exp[i\Delta T/4] \tag{C.20}
\end{aligned}$$

Freie Evolution nach dem zweiten π -Puls

Nach der Wechselwirkung mit dem zweiten π -Puls entwickelt sich das System ungestört bis zum Zeitpunkt $t_6 = T$:

$$\begin{aligned}
c_1(t_6) &= -\frac{\sqrt{2}}{2} [\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha \exp(-i\delta_{24}T/2)] \exp[i\Delta T/2], \\
c_2(t_6) &= i \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} [\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha (\exp[-i\delta_{24}T/4] + \exp[-i\delta_{13}T/2] \\
&\quad - \exp[-i\delta_{13}T/2 - i\delta_{24}T/4])] \exp[i\Delta T/2], \\
c_3(t_6) &= \sin \alpha \cos \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} (1 - \exp[-i\delta_{24}T/2]) \exp[-i\delta_{13}T/4] \exp[i\Delta T/2], \\
c_4(t_6) &= i \sin \alpha \frac{\sqrt{2}}{2} [\cos^2 \alpha (1 - \exp[-i\delta_{13}T/2] + \exp[-i\delta_{13}T/2 - i\delta_{24}T/4]) \\
&\quad + \sin^2 \alpha \exp(-i\delta_{24}T/4)] \exp[i\Delta T/2] \exp[-i\delta_{24}T/4] \tag{C.21}
\end{aligned}$$

Polarisation zum Zeitpunkt $t = T$

Die rephasierte Polarisation zum finalen Zeitpunkt $t = T$ ergibt sich durch:

$$P_{reph} = \mu_{12}c_1(t_6)c_2^*(t_6) + \mu_{14}c_1(t_6)c_4^*(t_6) + \mu_{32}c_3(t_6)c_2^*(t_6) + \mu_{34}c_3(t_6)c_4^*(t_6) \quad (C.22)$$

Hierbei ist zu beachten, dass bei der bisherigen Betrachtung angenommen wurde, dass das System zu Beginn im Zustand 1 vorlag. Um die Polarisation für den zweiten Fall des initialen Zustandes 3 zu berechnen, muss lediglich δ_{13} durch $-\delta_{13}$ ersetzt werden.

Die gesamte Polarisation (innerhalb einer magnetischen Lage A oder B) ergibt sich dann zum Zeitpunkt $t = T$ zu:

$$\begin{aligned} P_{A,B} = & P_0 [1 - 16 \cos^2 \alpha \sin^2 \alpha (2 \sin^2(\delta_{24}T/8) \cos^2(\delta_{13}T/8) \\ & + 2 \cos^2(\delta_{24}T/8) \sin^2(\delta_{13}T/8) + \cos 2\alpha \sin(\delta_{24}T/4) \sin(\delta_{13}T/4)) \\ & \cdot \sin^2(\delta_{24}T/8) \sin^2(\delta_{13}T/8)] \end{aligned} \quad (C.23)$$

Um den Zerfall der Polarisation aufgrund von dekohärenten Effekten zu berücksichtigen, muss (C.23) um einen exponentiellen Faktor $\exp(-\Gamma_{decoh}T)$ erweitert werden, wobei $1/\Gamma_{decoh}$ durch die Dekohärenzzeit T_2 gegeben ist. Aus den erweiterten Polarisationen P_A und P_B kann dann mittels (4.3) die Variation der Lichtspeichereffizienz in Abhängigkeit der Speicherzeit $T = \Delta t$ bestimmt werden.

Anhang D

Skalierung des Spinechosignals während der ZEFOZ-Gradientensuche

Wird bei der Gradientensuche des optimalen statischen Magnetfeldes (s. Kap. 6.2.5) die Bewertung der erreichten Kohärenzzeit T_2 nicht durch eine zeitlich aufgelöste Messung der Zerfalldynamik ermittelt, sondern lediglich durch Messung bei einer festen Echoverzögerung 2τ , so muss diese im Verlauf des Verfahrens angepasst werden, um dem ansteigenden Spinechosignal E Rechnung zu tragen. Wird die initiale Echoverzögerung $2\tau^{(0)}$ bei Iteration n auf $2\tau^{(n)}$ vergrößert, bricht die Signalstärke $E^{(n)}(2\tau^{(0)})$ auf $E^{(n)}(2\tau^{(n)})$ ein. Dies ist nicht durch zusätzliche Dekohärenz o.ä. bedingt, sondern entspricht lediglich der zeitlichen Abnahme des Signalverlaufs gemäß dem Modell des Phasengedächtnisses (s. Kap. 6.2.2). Um das projizierte Spinechosignal ab der Generation n zu erhalten, wird daher der Skalierungsfaktor

$$\delta E = \frac{E^{(n)}(2\tau^{(0)})}{E^{(n)}(2\tau^{(n)})} \quad (\text{D.1})$$

eingeführt, welcher die korrekte Darstellung des Suchfortschrittes erlaubt (s. auch Abb. 6.10 rechts). Mittels Gleichung (6.11), welche den zeitlichen Zerfall von $E(t)$ beschreibt, ergibt sich

$$\delta E = \exp \left(\frac{(2\tau^{(n)})^2 - (2\tau^{(0)})^2}{(T_2^{(n)})^2} \right) \quad (\text{D.2})$$

wobei $T_2^{(n)}$ die Kohärenzzeit nach der n -ten Iteration ist. Diese lässt sich wiederum mittels (6.11) über die globale Spinechoamplitude E_0 und das Spinechosignal $E^{(n)}(2\tau^{(n)})$ bestimmen:

$$T_2^{(n)} = \frac{2\tau^{(n)}}{\sqrt{-\ln\left(\frac{E^{(n)}(2\tau^{(n)})}{E_0}\right)}} \quad (\text{D.3})$$

Somit folgt schließlich:

$$\delta E = \exp \left(\left[\frac{(2\tau^{(0)})^2}{(2\tau^{(n)})^2} - 1 \right] \cdot \ln \left(\frac{E^{(n)}(2\tau^{(n)})}{E_0} \right) \right) \quad (\text{D.4})$$

Mittels dieses Faktors kann die Spinechosignalstärke für alle Iteration größer n , bei denen die Verzögerung nicht mehr $2\tau^{(0)}$ sondern $2\tau^{(n)}$ beträgt, der initialen Skalierung (Iteration 0 bis n) angepasst werden.

Literaturverzeichnis

- [1] M. A. Nielsen, I. L. Chuang: *Quantum Computation and Quantum Information*. Cambridge University Press, Cambridge, 10. Aufl. (2010), ISBN 9781107002173 (zitiert auf Seite 1)
- [2] T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe, J. L. O'Brien: *Quantum computers*. Nature **464**(7285) 45–53 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature08812> (zitiert auf Seite 1)
- [3] J. L. O'Brien: *Optical Quantum Computing*. Science **318**(5856) 1567–1570 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1126/science.1142892> (zitiert auf Seite 1)
- [4] C. Simon, M. Afzelius, J. Appel, A. Boyer de la Giroday, S. J. Dewhurst, N. Gisin, C. Y. Hu, F. Jelezko, S. Kröll, J. H. Müller, J. Nunn, E. S. Polzik, J. G. Rarity, H. De Riedmatten, W. Rosenfeld, A. J. Shields, N. Sköld, R. M. Stevenson, R. Thew, I. A. Walmsley, M. C. Weber, H. Weinfurter, J. Wrachtrup, R. J. Young: *Quantum memories*. The European Physical Journal D **58**(1) 1–22 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1140/epjd/e2010-00103-y> (zitiert auf Seite: 1, 15, 23, 55)
- [5] A. I. Lvovsky, B. C. Sanders, W. Tittel: *Optical quantum memory*. Nature Photonics **3**(12) 706–714 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2009.231> (zitiert auf Seite: 1, 15, 23)
- [6] K. Hammerer, A. S. Sørensen, E. S. Polzik: *Quantum interface between light and atomic ensembles*. Reviews of Modern Physics **82**(2) 1041–1093 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.82.1041> (zitiert auf Seite: 1, 23)
- [7] M. D. Lukin: *Colloquium: Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles*. Reviews of Modern Physics **75**(2) 457–472 (2003), URL <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.75.457> (zitiert auf Seite: 1, 15, 21, 23)
- [8] W. Tittel, M. Afzelius, T. Chanelière, R. L. Cone, S. Kröll, S. A. Moiseev, M. Sellars: *Photon-echo quantum memory in solid state systems*. Laser & Photonics Reviews **4**(2) 244–267 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1002/lpor.200810056> (zitiert auf Seite 1)
- [9] S. E. Harris: *Electromagnetically Induced Transparency*. Physics Today **50**(7) 36–42 (1997), URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.881806> (zitiert auf Seite 1)
- [10] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, J. Marangos: *Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media*. Reviews of Modern Physics **77**(2) 633–673 (2005), URL <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.77.633> (zitiert auf Seite: 1, 15, 19, 21, 22, 23)
- [11] J. P. Marangos, T. Halfmann: *Electromagnetically Induced Transparency*. M. Bass (Hg.) *Handbook of Optics*, Bd. 4, Kap. 14, 14.1–14.44, McGraw-Hill, New York, 3. Aufl. (2009), ISBN 9780071498920 (zitiert auf Seite: 1, 15, 19)

- [12] L. V. Hau, S. E. Harris, Z. Dutton, C. H. Behroozi: *Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas*. Nature **397**(6720) 594–598 (1999), URL <http://dx.doi.org/10.1038/17561> (zitiert auf Seite 1)
- [13] M. M. Kash, V. A. Sautenkov, A. S. Zibrov, L. Hollberg, G. R. Welch, M. D. Lukin, Y. Rostovtsev, E. S. Fry, M. O. Scully: *Ultralow Group Velocity and Enhanced Nonlinear Optical Effects in a Coherently Driven Hot Atomic Gas*. Physical Review Letters **82**(26) 5229–5232 (1999), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.82.5229> (zitiert auf Seite 1)
- [14] D. Budker, D. F. Kimball, S. M. Rochester, V. V. Yashchuk: *Nonlinear Magneto-optics and Reduced Group Velocity of Light in Atomic Vapor with Slow Ground State Relaxation*. Physical Review Letters **83**(9) 1767–1770 (1999), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.83.1767> (zitiert auf Seite 1)
- [15] D. F. Phillips, A. Fleischhauer, A. Mair, R. L. Walsworth, M. D. Lukin: *Storage of Light in Atomic Vapor*. Physical Review Letters **86**(5) 783–786 (2001), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.86.783> (zitiert auf Seite: 1, 22, 98)
- [16] C. Liu, Z. Dutton, C. H. Behroozi, L. V. Hau: *Observation of coherent optical information storage in an atomic medium using halted light pulses*. Nature **409**(6819) 490–493 (2001), URL <http://dx.doi.org/10.1038/35054017> (zitiert auf Seite 1)
- [17] J. Nunn, K. Reim, K. C. Lee, V. O. Lorenz, B. J. Sussman, I. A. Walmsley, D. Jaksch: *Multimode Memories in Atomic Ensembles*. Physical Review Letters **101**(26) 260502 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.260502> (zitiert auf Seite: 1, 55)
- [18] A. Grodecka-Grad, E. Zeuthen, A. S. Sørensen: *High-Capacity Spatial Multimode Quantum Memories Based on Atomic Ensembles*. Physical Review Letters **109**(13) 133601 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.133601> (zitiert auf Seite: 1, 55)
- [19] C. Simon, H. de Riedmatten, M. Afzelius, N. Sangouard, H. Zbinden, N. Gisin: *Quantum Repeaters with Photon Pair Sources and Multimode Memories*. Physical Review Letters **98**(19) 190503 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.190503> (zitiert auf Seite: 1, 55)
- [20] O. A. Collins, S. D. Jenkins, A. Kuzmich, T. A. B. Kennedy: *Multiplexed Memory-Insensitive Quantum Repeaters*. Physical Review Letters **98**(6) 060502 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.060502> (zitiert auf Seite: 1, 2, 55)
- [21] H.-J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac, P. Zoller: *Quantum Repeaters: The Role of Imperfect Local Operations in Quantum Communication*. Physical Review Letters **81**(26) 5932–5935 (1998), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.5932> (zitiert auf Seite 2)
- [22] S.-Y. Lan, A. G. Radnaev, O. A. Collins, D. N. Matsukevich, T. A. B. Kennedy, A. Kuzmich: *A Multiplexed Quantum Memory*. Optics Express **17**(16) 13639–13645 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OE.17.013639> (zitiert auf Seite 2)

- [23] N. Sangouard, C. Simon, H. de Riedmatten, N. Gisin: *Quantum repeaters based on atomic ensembles and linear optics*. Review of Modern Physics **83**(1) 33–80 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.83.33> (zitiert auf Seite 2)
- [24] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, P. R. Hemmer: *Observation of Ultraslow and Stored Light Pulses in a Solid*. Physical Review Letters **88**(2) 023602 (2001), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.023602> (zitiert auf Seite 2)
- [25] R. M. Camacho, C. J. Broadbent, I. Ali-Khan, J. C. Howell: *All-Optical Delay of Images using Slow Light*. Physical Review Letters **98**(4) 043902 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.043902> (zitiert auf Seite: 2, 34, 55)
- [26] M. Shuker, O. Firstenberg, R. Pugatch, A. Ron, N. Davidson: *Storing Images in Warm Atomic Vapor*. Physical Review Letters **100**(22) 223601 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.223601> (zitiert auf Seite: 2, 55, 57, 58, 98)
- [27] P. K. Vudyasetu, R. M. Camacho, J. C. Howell: *Storage and Retrieval of Multimode Transverse Images in Hot Atomic Rubidium Vapor*. Physical Review Letters **100**(12) 123903 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.123903> (zitiert auf Seite: 2, 34, 55, 58, 98)
- [28] Q. Glorieux, J. B. Clark, A. M. Marino, Z. Zhou, P. D. Lett: *Temporally multiplexed storage of images in a gradient echo memory*. Optics Express **20**(11) 12350–12358 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OE.20.012350> (zitiert auf Seite: 2, 55)
- [29] D. B. Higginbottom, B. M. Sparkes, M. Rancic, O. Pinel, M. Hosseini, P. K. Lam, B. C. Buchler: *Spatial-mode storage in a gradient-echo memory*. Physical Review A **86**(2) 023801 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.86.023801> (zitiert auf Seite: 2, 55)
- [30] H. J. Coufal, D. Psaltis, G. T. Sincerbox (Hg.): *Holographic Data Storage*. Springer, Berlin (2000), ISBN 3540666915 (zitiert auf Seite: 2, 55, 63)
- [31] S. Chu: *Cold atoms and quantum control*. Nature **416**(6877) 206–210 (2002), URL <http://dx.doi.org/10.1038/416206a> (zitiert auf Seite 3)
- [32] I. B. Mekhov, H. Ritsch: *Quantum optics with ultracold quantum gases: towards the full quantum regime of the light-matter interaction*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **45**(10) 102001 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/45/10/102001> (zitiert auf Seite 3)
- [33] I. Bloch, J. Dalibard, W. Zwerger: *Many-body physics with ultracold gases*. Reviews of Modern Physics **80**(3) 885–964 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.80.885> (zitiert auf Seite 3)
- [34] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer, M. D. Lukin: *Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond*. Science **314**(5797) 281–285 (2006), URL <http://dx.doi.org/10.1126/science.1131871> (zitiert auf Seite 3)
- [35] P. Neumann, J. Beck, M. Steiner, F. Rempp, H. Fedder, P. R. Hemmer, J. Wrachtrup, F. Jelezko: *Single-Shot Readout of a Single Nuclear Spin*. Science **329**(5991) 542–544 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1126/science.1189075> (zitiert auf Seite 3)

- [36] G. de Lange, Z. H. Wang, D. Ristè, V. V. Dobrovitski, R. Hanson: *Universal Dynamical Decoupling of a Single Solid-State Spin from a Spin Bath*. Science **330**(6000) 60–63 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1126/science.1192739> (zitiert auf Seite 3)
- [37] P. C. Maurer, G. Kucsko, C. Latta, L. Jiang, N. Y. Yao, S. D. Bennett, F. Pastawski, D. Hunger, N. Chisholm, M. Markham, D. J. Twitchen, J. I. Cirac, M. D. Lukin: *Room-Temperature Quantum Bit Memory Exceeding One Second*. Science **336**(6086) 1283–1286 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1126/science.1220513> (zitiert auf Seite 3)
- [38] J. R. Petta, A. C. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson, A. C. Gossard: *Coherent Manipulation of Coupled Electron Spins in Semiconductor Quantum Dots*. Science **309**(5744) 2180–2184 (2005), URL <http://dx.doi.org/10.1126/science.1116955> (zitiert auf Seite 3)
- [39] F. H. L. Koppens, C. Buizert, K. J. Tielrooij, I. T. Vink, K. C. Nowack, T. Meunier, L. P. Kouwenhoven, L. M. K. Vandersypen: *Driven coherent oscillations of a single electron spin in a quantum dot*. Nature **442**(7104) 766–771 (2006), URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature05065> (zitiert auf Seite 3)
- [40] G. H. Dieke: *Spectra and energy levels of rare earth ions in crystals*. H. M. Crosswhite, H. Crosswhite (Hg.), Interscience, New York (1968), ISBN 0470213906 (zitiert auf Seite: 3, 5)
- [41] S. Hufner: *Optical Spectra of Transparent Rare Earth Compounds*. Academic Press, New York (1978), ISBN 0123604508 (zitiert auf Seite: 3, 5)
- [42] R. M. Macfarlane, R. M. Shelby: *Coherent Transient and Holeburning Spectroscopy of Rare Earth Ions in Solids*. A. A. Kaplyanskii, R. M. Macfarlane (Hg.) *Spectroscopy of Solids Containing Rare Earth Ions*, Bd. 21 von *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, Kap. 3, 51–184, Elsevier, Amsterdam (1987), ISBN 9780444870513, URL <http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-444-87051-3.50009-2> (zitiert auf Seite: 3, 6, 13, 14, 46)
- [43] R. M. Macfarlane: *High-resolution laser spectroscopy of rare-earth doped insulators: a personal perspective*. Journal of Luminescence **100**(1-4) 1–20 (2002), URL [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-2313\(02\)00450-7](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-2313(02)00450-7) (zitiert auf Seite: 3, 13, 14)
- [44] N. G. Connelly, T. Damhus, R. M. Hartshorn, A. T. Hutton (Hg.): *Nomenclature of Inorganic Chemistry – IUPAC Recommendations 2005*. RSC Publishing, Cambridge (2005), ISBN 0854044388 (zitiert auf Seite 3)
- [45] T. Böttger, C. W. Thiel, R. L. Cone, Y. Sun: *Effects of magnetic field orientation on optical decoherence in $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$* . Physical Review B **79**(11) 115104 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.115104> (zitiert auf Seite 3)
- [46] R. Yano, M. Mitsunaga, N. Uesugi: *Ultralong optical dephasing time in $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$* . Optics Letters **16**(23) 1884–1886 (1991), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.16.001884> (zitiert auf Seite: 3, 4, 13, 76)
- [47] R. W. Equall, Y. Sun, R. L. Cone, R. M. Macfarlane: *Ultraslow Optical Dephasing in $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$* . Physical Review Letters **72**(14) 2179–2182 (1994), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.72.2179> (zitiert auf Seite: 3, 13)

- [48] P. C. Becker, N. A. Olsson, J. R. Simpson: *Erbium-Doped Fiber Amplifiers – Fundamentals and Technology*. Academic Press, San Diego (1999), ISBN 0120845903 (zitiert auf Seite 4)
- [49] B. A. Maksimov, Y. A. Kharitonov, V. V. Illyukhin, N. V. Belov: *Crystal structure of Y-Oxysilicate $Y_2(SiO_4)O$* . Soviet Physics Doklady **13** 1188–1190 (1969) (zitiert auf Seite 4)
- [50] M. Lovrić, P. Glasenapp, D. Suter: *Spin Hamiltonian characterization and refinement for $Pr^{3+}:YAlO_3$ and $Pr^{3+}:Y_2SiO_5$* . Physical Review B **85**(1) 014429 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.85.014429> (zitiert auf Seite: 4, 8, 9, 10, 11, 74, 82, 103)
- [51] Z. Sun, J. Wang, M. Li, Y. Zhou: *Mechanical properties and damage tolerance of Y_2SiO_5* . Journal of the European Ceramic Society **28**(15) 2895–2901 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2008.04.029> (zitiert auf Seite 4)
- [52] W. Y. Ching, L. Ouyang, Y.-N. Xu: *Electronic and optical properties of Y_2SiO_5 and $Y_2Si_2O_7$ with comparisons to α - SiO_2 and Y_2O_3* . Physical Review B **67**(24) 245108 (2003), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.67.245108> (zitiert auf Seite 4)
- [53] J. J. Longdell: *Quantum Information Processing in Rare Earth Ion Doped Insulators*. Dissertation, Australian National University, Canberra (2003), URL <http://hdl.handle.net/1885/47689> (zitiert auf Seite 4)
- [54] R. W. Equall, R. L. Cone, R. M. Macfarlane: *Homogeneous broadening and hyperfine structure of optical transitions in $Pr^{3+}:Y_2SiO_5$* . Physical Review B **52**(6) 3963–3969 (1995), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.52.3963> (zitiert auf Seite: 5, 8, 10, 13, 14)
- [55] J. M. Baker, B. Bleaney: *Paramagnetic Resonance in Some Lanthanone Ethyl Sulphates*. Proceedings of the Royal Society A **245**(1241) 156–174 (1958), URL <http://dx.doi.org/10.1098/rspa.1958.0074> (zitiert auf Seite: 5, 8)
- [56] A. A. Kaplyanskii, R. M. Macfarlane (Hg.): *Spectroscopy of Solids Containing Rare Earth Ions*, Bd. 21 von *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*. Elsevier, Amsterdam (1987), ISBN 0444870512, URL <http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-444-87051-3.50001-8> (zitiert auf Seite: 5, 6)
- [57] J. H. Van Vleck: *The Puzzle of Rare-earth Spectra in Solids*. Journal of Physical Chemistry **41**(1) 67–80 (1937), URL <http://dx.doi.org/10.1021/j150379a006> (zitiert auf Seite 6)
- [58] J. J. Longdell, M. J. Sellars, N. B. Manson: *Hyperfine interaction in ground and excited states of praseodymium-doped yttrium orthosilicate*. Physical Review B **66**(3) 035101 (2002), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.66.035101> (zitiert auf Seite: 7, 8, 9, 11, 74, 82)
- [59] C. P. Slichter: *Principles of Magnetic Resonance*. Springer, Berlin, 3. Aufl. (1990), ISBN 3540501576 (zitiert auf Seite 7)
- [60] M. A. Teplov: *Magnetic Resonance on Pr^{141} Nuclei in a $Pr_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$ Single Crystal*. Soviet Physics JETP **26**(5) 872–875 (1968) (zitiert auf Seite: 7, 8, 11)

- [61] K. Holliday, M. Croci, E. Vauthey, U. P. Wild: *Spectral hole burning and holography in an $Y_2SiO_5:Pr^{3+}$ crystal*. Physical Review B **47**(22) 14741–14752 (1993), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.47.14741> (zitiert auf Seite: 8, 10, 14, 45, 50)
- [62] H. Goldstein, C. P. Poole Jr., J. L. Safko: *Classical Mechanics*. Addison-Wesley, San Francisco, 3. Aufl. (2002), ISBN 0201657023 (zitiert auf Seite 9)
- [63] M. Mitsunaga, E. S. Kintzer, R. G. Brewer: *Raman heterodyne interference: Observations and analytic theory*. Physical Review B **31**(11) 6947–6957 (1985), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.31.6947> (zitiert auf Seite: 10, 69)
- [64] M. Nilsson, L. Rippe, S. Kröll, R. Klieber, D. Suter: *Hole-burning techniques for isolation and study of individual hyperfine transitions in inhomogeneously broadened solids demonstrated in $Pr^{3+}:Y_2SiO_5$* . Physical Review B **70**(21) 214116 (2004), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.70.214116> (zitiert auf Seite: 10, 14)
- [65] E. Fraval, M. J. Sellars, J. J. Longdell: *Method of Extending Hyperfine Coherence Times in $Pr^{3+}:Y_2SiO_5$* . Physical Review Letters **92**(7) 077601 (2004), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.92.077601> (zitiert auf Seite: 13, 77, 79, 81, 82, 84, 85)
- [66] R. M. Macfarlane, R. M. Shelby: *Sub-kilohertz optical linewidths of the $^7F_0 \leftrightarrow ^5D_0$ transition in $Y_2O_3:Eu^{3+}$* . Optics Communications **39**(3) 169–171 (1981), URL [http://dx.doi.org/10.1016/0030-4018\(81\)90048-1](http://dx.doi.org/10.1016/0030-4018(81)90048-1) (zitiert auf Seite 13)
- [67] N. B. Manson, M. J. Sellars, P. T. Fisk, R. S. Meltzer: *Hole burning of rare earth ions with kHz resolution*. Journal of Luminescence **64**(1-6) 19–23 (1995), URL [http://dx.doi.org/10.1016/0022-2313\(95\)00004-A](http://dx.doi.org/10.1016/0022-2313(95)00004-A) (zitiert auf Seite 13)
- [68] B. S. Ham, M. S. Shahriar, M. K. Kim, P. R. Hemmer: *Frequency-selective time-domain optical data storage by electromagnetically induced transparency in a rare-earth-doped solid*. Optics Letters **22**(24) 1849–1851 (1997), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.22.001849> (zitiert auf Seite: 14, 54, 59, 79)
- [69] F. Beil, J. Klein, G. Nikoghosyan, T. Halfmann: *Electromagnetically induced transparency and retrieval of light pulses in a Λ -type and a V-type level scheme in $Pr^{3+}:Y_2SiO_5$* . Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **41**(7) 074001 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/41/7/074001> (zitiert auf Seite: 14, 46, 51)
- [70] A. M. STONEHAM: *Shapes of Inhomogeneously Broadened Resonance Lines in Solids*. Reviews of Modern Physics **41**(1) 82–108 (1969), URL <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.41.82> (zitiert auf Seite 13)
- [71] W. E. Moerner (Hg.): *Persistent Spectral Hole-Burning: Science and Applications*. Springer, Berlin (1988), ISBN 9783642832925, URL <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-642-83290-1> (zitiert auf Seite: 14, 46)
- [72] J. Klein: *Adiabatischer Besetzungstransfer mittels RAP und STIRAP in einem seltenerd-dotierten Festkörper*. Dissertation, Technische Universität Kaiserslautern (2007), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite: 14, 45)

- [73] F. Beil: *Kohärente optische Datenverarbeitung in einem seltenerd-dotierten Festkörper*. Dissertation, Technische Universität Darmstadt (2010), URL <http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/id/eprint/2340> (zitiert auf Seite: 14, 25, 90)
- [74] W. R. Babbitt, T. W. Mossberg: *Time-domain frequency-selective optical data storage in a solid-state material*. Optics Communications **65**(3) 185–188 (1988), URL [http://dx.doi.org/10.1016/0030-4018\(88\)90346-X](http://dx.doi.org/10.1016/0030-4018(88)90346-X) (zitiert auf Seite: 14, 59)
- [75] M. Mitsunaga, R. Yano, N. Uesugi: *Time- and frequency-domain hybrid optical memory: 1.6-kbit data storage in $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$* . Optics Letters **16**(23) 1890–1892 (1991), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.16.001890> (zitiert auf Seite: 14, 59)
- [76] M. Mitsunaga, N. Uesugi, H. Sasaki, K. Karaki: *Holographic motion picture by $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$* . Optics letters **19**(10) 752–754 (1994), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.19.000752> (zitiert auf Seite: 14, 59)
- [77] X. A. Shen, E. Chiang, R. Kachru: *Time-domain holographic image storage*. Optics Letters **19**(16) 1246–1248 (1994), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.19.001246> (zitiert auf Seite: 14, 59)
- [78] X. A. Shen, R. Kachru: *Optical header recognition by spectroholographic filtering*. Optics Letters **20**(24) 2508–2510 (1995), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.20.002508> (zitiert auf Seite 14)
- [79] I. Novikova, R. L. Walsworth, Y. Xiao: *Electromagnetically induced transparency-based slow and stored light in warm atoms*. Laser & Photonics Reviews **6**(3) 333–353 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1002/lpor.201100021> (zitiert auf Seite: 15, 21, 98)
- [80] B. W. Shore: *The Theory of Coherent Atomic Excitation*. John Wiley & Sons, New York (1990), ISBN 0471524174 (zitiert auf Seite 16)
- [81] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë: *Quantum Mechanics*. John Wiley & Sons, New York (1977), ISBN 0471569526 (zitiert auf Seite 18)
- [82] S. H. Autler, C. H. Townes: *Stark Effect in Rapidly Varying Fields*. Physical Review **100**(2) 703–722 (1955), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.100.703> (zitiert auf Seite 21)
- [83] P. M. Anisimov, J. P. Dowling, B. C. Sanders: *Objectively Discerning Autler-Townes Splitting from Electromagnetically Induced Transparency*. Physical Review Letters **107**(16) 163604 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.163604> (zitiert auf Seite 21)
- [84] L. Giner, L. Veissier, B. Sparkes, A. S. Sheremet, A. Nicolas, O. S. Mishina, M. Scherman, S. Burks, I. Shomroni, D. V. Kupriyanov, P. K. Lam, E. Giacobino, J. Laurat: *Experimental investigation of the transition between Autler-Townes splitting and electromagnetically-induced-transparency models*. Physical Review A **87**(1) 013823 (2013), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.87.013823> (zitiert auf Seite 21)
- [85] A. Javan, O. Kocharovskaya, H. Lee, M. Scully: *Narrowing of electromagnetically induced transparency resonance in a Doppler-broadened medium*. Physical Review A **66**(1) 013805 (2002), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.66.013805> (zitiert auf Seite 21)

- [86] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, A. S. Zibrov, H. G. Robinson, V. L. Velichansky, L. Hollberg, M. O. Scully: *Spectroscopy in Dense Coherent Media: Line Narrowing and Interference Effects*. Physical Review Letters **79**(16) 2959–2962 (1997), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.79.2959> (zitiert auf Seite 21)
- [87] S. E. Harris, J. E. Field, A. Kasapi: *Dispersive properties of electromagnetically induced transparency*. Physical Review A **46**(1) R29–R32 (1992), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.46.R29> (zitiert auf Seite 21)
- [88] M. Fleischhauer, M. D. Lukin: *Quantum memory for photons: Dark-state polaritons*. Physical Review A **65**(2) 022314 (2002), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.65.022314> (zitiert auf Seite: 22, 23, 26, 27, 59)
- [89] M. Fleischhauer, M. D. Lukin: *Dark-State Polaritons in Electromagnetically Induced Transparency*. Physical Review Letters **84**(22) 5094–5097 (2000), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.5094> (zitiert auf Seite: 22, 23)
- [90] G. Nikoghosyan, M. Fleischhauer: *Stationary light in cold-atomic gases*. Physical Review A **80**(1) 013818 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.80.013818> (zitiert auf Seite 22)
- [91] M. Fleischhauer, A. S. Manka: *Propagation of laser pulses and coherent population transfer in dissipative three-level systems: An adiabatic dressed-state picture*. Physical Review A **54**(1) 794–803 (1996), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.54.794> (zitiert auf Seite 26)
- [92] J. T. Manassah, I. Gladkova: *Density Matrix Computation of Light Slowing and Light Storage in a Λ Vapor System*. Laser Physics **11**(6) 801–806 (2001) (zitiert auf Seite 26)
- [93] T. Golubeva, Y. Golubev, O. Mishina, A. Bramati, J. Laurat, E. Giacobino: *High-speed spatially multimode atomic memory*. Physical Review A **83**(5) 053810 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.83.053810> (zitiert auf Seite 26)
- [94] P. R. Berman, C. H. Raymond Ooi: *Pulse propagation in a medium of Λ -type atoms*. Physical Review A **86**(5) 053812 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.86.053812> (zitiert auf Seite 26)
- [95] G. Nikoghosyan, G. Grigoryan: *Influence of relaxation on propagation, storage, and retrieving of light pulses in a medium with electromagnetically induced transparency*. Physical Review A **72**(4) 043814 (2005), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.72.043814> (zitiert auf Seite 26)
- [96] A. D. Slepikov, A. R. Bhagwat, V. Venkataraman, P. Londero, A. L. Gaeta: *Generation of large alkali vapor densities inside bare hollow-core photonic band-gap fibers*. Optics Express **16**(23) 18976–18983 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OE.16.018976> (zitiert auf Seite 26)
- [97] M. Bajcsy, S. Hofferberth, T. Peyronel, V. Balic, Q. Liang, A. S. Zibrov, V. Vuletic, M. D. Lukin: *Laser-cooled atoms inside a hollow-core photonic-crystal fiber*. Physical Review A **83**(6) 063830 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.83.063830> (zitiert auf Seite 26)

- [98] S. Zhang, J. F. Chen, C. Liu, S. Zhou, M. M. T. Loy, G. K. L. Wong, S. Du: *A dark-line two-dimensional magneto-optical trap of ^{85}Rb atoms with high optical depth*. Review of Scientific Instruments **83**(7) 073102 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.4732818> (zitiert auf Seite 26)
- [99] Y.-H. Chen, M.-J. Lee, I.-C. Wang, S. Du, Y.-F. Chen, Y.-C. Chen, I. A. Yu: *Coherent Optical Memory with High Storage Efficiency and Large Fractional Delay*. Physical Review Letters **110**(8) 083601 (2013), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.083601> (zitiert auf Seite: 26, 28, 96)
- [100] G. Heinze: *Kohärente magnetische Hochfrequenzanregungen eines seltenerd-dotierten Festkörpers*. Diplomarbeit, Technische Universität Kaiserslautern (2008), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite: 27, 42, 51)
- [101] M. D. Lukin, A. Imamoglu: *Nonlinear Optics and Quantum Entanglement of Ultraslow Single Photons*. Physical Review Letters **84**(7) 1419–1422 (2000), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.1419> (zitiert auf Seite 27)
- [102] S. E. Harris, Y. Yamamoto: *Photon Switching by Quantum Interference*. Physical Review Letters **81**(17) 3611–3614 (1998), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.3611> (zitiert auf Seite 27)
- [103] A. K. Patnaik, F. Le Kien, K. Hakuta: *Manipulating the retrieval of stored light pulses*. Physical Review A **69**(3) 035803 (2004), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.69.035803> (zitiert auf Seite 27)
- [104] A. B. Matsko, Y. V. Rostovtsev, O. Kocharovskaya, A. S. Zibrov, M. O. Scully: *Nonadiabatic approach to quantum optical information storage*. Physical Review A **64**(4) 043809 (2001), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.64.043809> (zitiert auf Seite 27)
- [105] V. Chaltykian, G. Grigoryan, G. Nikogosyan: *Dark-state evolution and self-phase modulation in a Λ medium*. Physical Review A **68**(1) 013819 (2003), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.68.013819> (zitiert auf Seite 27)
- [106] A. V. Gorshkov, A. André, M. Fleischhauer, A. S. Sørensen, M. D. Lukin: *Universal Approach to Optimal Photon Storage in Atomic Media*. Physical Review Letters **98**(12) 123601 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.123601> (zitiert auf Seite: 27, 28)
- [107] I. Novikova, A. V. Gorshkov, D. F. Phillips, A. S. Sørensen, M. D. Lukin, R. L. Walsworth: *Optimal Control of Light Pulse Storage and Retrieval*. Physical Review Letters **98**(24) 243602 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.243602> (zitiert auf Seite 27)
- [108] A. V. Gorshkov, A. André, M. D. Lukin, A. S. Sørensen: *Photon storage in Λ -type optically dense atomic media. I. Cavity model*. Physical Review A **76**(3) 033804 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.76.033804> (zitiert auf Seite 27)
- [109] A. V. Gorshkov, A. André, M. D. Lukin, A. S. Sørensen: *Photon storage in Λ -type optically dense atomic media. II. Free-space model*. Physical Review A **76**(3) 033805 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.76.033805> (zitiert auf Seite: 27, 28)

- [110] A. V. Gorshkov, A. André, M. D. Lukin, A. S. Sørensen: *Photon storage in Λ -type optically dense atomic media. III. Effects of inhomogeneous broadening*. Physical Review A **76**(3) 033806 (2007), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.76.033806> (zitiert auf Seite 27)
- [111] F. Beil, M. Buschbeck, G. Heinze, T. Halfmann: *Light storage in a doped solid enhanced by feedback-controlled pulse shaping*. Physical Review A **81**(5) 053801 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.81.053801> (zitiert auf Seite: 27, 90, 96)
- [112] N. B. Phillips, A. V. Gorshkov, I. Novikova: *Optimal light storage in atomic vapor*. Physical Review A **78**(2) 023801 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.78.023801> (zitiert auf Seite 27)
- [113] K. Surmacz, J. Nunn, K. Reim, K. C. Lee, V. O. Lorenz, B. Sussman, I. A. Walmsley, D. Jaksch: *Efficient spatially resolved multimode quantum memory*. Physical Review A **78**(3) 033806 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.78.033806> (zitiert auf Seite: 28, 50, 55, 63)
- [114] L. P. Yatsenko, V. I. Romanenko, B. W. Shore, K. Bergmann: *Stimulated Raman adiabatic passage with partially coherent laser fields*. Physical Review A **65**(4) 043409 (2002), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.65.043409> (zitiert auf Seite 28)
- [115] T. Abel: *Lokalisierte Lichtspeicherung in einem seltenerd-dotierten Festkörper*. Masterthesis, Technische Universität Darmstadt (2013), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite 30)
- [116] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, H. Ward: *Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator*. Applied Physics B **31**(2) 97–105 (1983), URL <http://dx.doi.org/10.1007/BF00702605> (zitiert auf Seite 31)
- [117] D. Schraft: *Entwicklung eines evolutionären Verfahrens zur Optimierung quantenoptischer Prozesse*. Masterthesis, Technische Universität Darmstadt (2010), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite: 31, 90, 91)
- [118] E. A. Donley, T. P. Heavner, F. Levi, M. O. Tataw, S. R. Jefferts: *Double-pass acousto-optic modulator system*. Review of Scientific Instruments **76**(6) 063112 (2005), URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.1930095> (zitiert auf Seite 31)
- [119] J. W. Goodman: *Introduction to Fourier Optics*. Roberts & Company Publishers, Greenwood Village, 3. Aufl. (2005), ISBN 0974707724 (zitiert auf Seite 33)
- [120] A. Rudolf: *Speicherung von Bildern in atomaren Kohärenzen eines seltenerd-dotierten Festkörpers*. Masterthesis, Technische Universität Darmstadt (2009), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite: 36, 56)
- [121] R. Flükiger, S. Y. Hariharan, R. Küntzler, H. L. Luo, F. Weiss, T. Wolf, J. Q. Xu: Nb-Ti. R. Flükiger, W. Klose (Hg.) *SpringerMaterials – The Landolt-Börnstein Database*, Bd. 21 B-2 von *Landolt-Börnstein – Group III Condensed Matter*, Springer, Berlin (1994), ISBN 3540575413, URL http://dx.doi.org/10.1007/10423690_53 (zitiert auf Seite 40)

- [122] S. Mieth: *Spektroskopie und Lichtspeicherung in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ in externen Magnetfeldern*. Masterthesis, Technische Universität Darmstadt (2010), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite: 42, 53, 54, 74)
- [123] E. L. Hahn: *Spin Echoes*. *Physical Review* **80**(4) 580–594 (1950), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.80.580> (zitiert auf Seite 51)
- [124] D. N. Matsukevich, T. Chanelière, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, A. Kuzmich: *Observation of Dark State Polariton Collapses and Revivals*. *Physical Review Letters* **96**(3) 033601 (2006), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.033601> (zitiert auf Seite: 53, 54)
- [125] S. D. Jenkins, D. N. Matsukevich, T. Chanelière, A. Kuzmich, T. A. B. Kennedy: *Theory of dark-state polariton collapses and revivals*. *Physical Review A* **73**(2) 021803 (2006), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.73.021803> (zitiert auf Seite: 53, 54)
- [126] L. Karpa, F. Vewinger, M. Weitz: *Resonance Beating of Light Stored Using Atomic Spinor Polaritons*. *Physical Review Letters* **101**(17) 170406 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.170406> (zitiert auf Seite 54)
- [127] T. Peters, Y.-H. Chen, J.-S. Wang, Y.-W. Lin, I. A. Yu: *Optimizing the retrieval efficiency of stored light pulses*. *Optics Express* **17**(8) 6665–6675 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OE.17.006665> (zitiert auf Seite 54)
- [128] G. Heinze, A. Rudolf, F. Beil, T. Halfmann: *Storage of images in atomic coherences in a rare-earth-ion-doped solid*. *Physical Review A* **81**(1) 011401 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.81.011401> (zitiert auf Seite: 54, 99, 101)
- [129] G. Heinze, S. Mieth, T. Halfmann: *Control of dark-state polariton collapses in a doped crystal*. *Physical Review A* **84**(1) 013827 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.84.013827> (zitiert auf Seite: 54, 99, 101)
- [130] Y. Tu, G. Zhang, Z. Zhai, J. Xu: *Angular multiplexing storage of light pulses and addressable optical buffer memory in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ based on electromagnetically induced transparency*. *Physical Review A* **80**(3) 033816 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.80.033816> (zitiert auf Seite: 55, 63, 65)
- [131] Z. Zhai, Y. Dou, J. Xu, G. Zhang: *Nondegenerate phase-conjugate wave via stored atomic coherence based on electromagnetically induced transparency in solids*. *Physical Review A* **83**(4) 043825 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.83.043825> (zitiert auf Seite: 55, 63, 64)
- [132] Z. Zhai, Y. Tu, Y. Dou, J. Xu, G. Zhang: *Bragg-matching characterization of atomic coherence gratings in an electromagnetically induced transparency solid with a confocal scheme*. *Optics Communications* **285**(3) 277–280 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.optcom.2011.09.025> (zitiert auf Seite: 55, 63, 64)
- [133] Y.-W. Cho, J.-E. Oh, Y.-H. Kim: *Diffusion-free image storage in hot atomic vapor*. *Physical Review A* **86**(1) 013844 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.86.013844> (zitiert auf Seite: 58, 98)

- [134] N. Ohlsson, M. Nilsson, S. Kröll, R. Krishna Mohan: *Long-time-storage mechanism for Tm:YAG in a magnetic field*. Optics Letters **28**(6) 450–452 (2003), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.28.000450> (zitiert auf Seite 59)
- [135] T. W. Mossberg: *Time-domain frequency-selective optical data storage*. Optics Letters **7**(2) 77–79 (1982), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.7.000077> (zitiert auf Seite 59)
- [136] H. Sasaki, K. Karaki: *Direct pattern recognition of a motion picture by hole-burning holography of $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$* . Applied Optics **36**(8) 1742–1746 (1997), URL <http://dx.doi.org/10.1364/AO.36.001742> (zitiert auf Seite 59)
- [137] J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, C. Simon, T. Chanelière: *Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol*. Physical Review A **79**(5) 053851 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.79.053851> (zitiert auf Seite 59)
- [138] N. Rentzsch: *Multiplexing mittels adiabatischer Lichtspeicherung in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$* . Masterthesis, Technische Universität Darmstadt (2011), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite: 59, 61, 63, 64, 66, 67)
- [139] G. Heinze, N. Rentzsch, T. Halfmann: *Multiplexed image storage by electromagnetically induced transparency in a solid*. Physical Review A **86**(5) 053837 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.86.053837> (zitiert auf Seite: 63, 66, 99, 101)
- [140] A. Y. Hamad, J. P. Wicksted: *Holographic image storage in Eu^{3+} -doped alkali aluminosilicate glasses*. Applied Optics **40**(11) 1822–1826 (2001), URL <http://dx.doi.org/10.1364/AO.40.001822> (zitiert auf Seite 63)
- [141] F. H. Mok, M. C. Tackitt, H. M. Stoll: *Storage of 500 high-resolution holograms in a LiNbO_3 crystal*. Optics Letters **16**(8) 605–607 (1991), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.16.000605> (zitiert auf Seite 63)
- [142] F. H. Mok: *Angle-multiplexed storage of 5000 holograms in lithium niobate*. Optics Letters **18**(11) 915–917 (1993), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.18.000915> (zitiert auf Seite 63)
- [143] I. Y. Dodin, N. J. Fisch: *Dynamic volume holography and optical information processing by Raman scattering*. Optics Communications **214**(1-6) 83–98 (2002), URL [http://dx.doi.org/10.1016/S0030-4018\(02\)02144-2](http://dx.doi.org/10.1016/S0030-4018(02)02144-2) (zitiert auf Seite 63)
- [144] D. V. Vasilyev, I. V. Sokolov, E. S. Polzik: *Quantum memory for images: A quantum hologram*. Physical Review A **77**(2) 020302 (2008), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.77.020302> (zitiert auf Seite 63)
- [145] H.-N. Dai, H. Zhang, S.-J. Yang, T.-M. Zhao, J. Rui, Y.-J. Deng, L. Li, N.-L. Liu, S. Chen, X.-H. Bao, X.-M. Jin, B. Zhao, J.-W. Pan: *Holographic Storage of Biphoton Entanglement*. Physical Review Letters **108**(21) 210501 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.210501> (zitiert auf Seite 63)
- [146] J. Mlynek, N. C. Wong, R. G. DeVoe, E. S. Kintzer, R. G. Brewer: *Raman Heterodyne Detection of Nuclear Magnetic Resonance*. Physical Review Letters **50**(13) 993–996 (1983), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.50.993> (zitiert auf Seite 69)

- [147] N. C. Wong, E. S. Kintzer, J. Mlynek, R. G. DeVoe, R. G. Brewer: *Raman heterodyne detection of nuclear magnetic resonance*. Physical Review B **28**(9) 4993–5010 (1983), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.28.4993> (zitiert auf Seite: 69, 70, 71)
- [148] T. Blasberg, D. Suter: *Determination of oscillator strengths in $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$ by Raman heterodyne and hole burning spectroscopy*. Journal of Luminescence **65**(4) 199–209 (1995), URL [http://dx.doi.org/10.1016/0022-2313\(95\)00065-2](http://dx.doi.org/10.1016/0022-2313(95)00065-2) (zitiert auf Seite 69)
- [149] R. Neuhaus, M. J. Sellars, S. J. Bingham, D. Suter: *Breaking the Stokes–anti-Stokes symmetry in Raman heterodyne detection of magnetic-resonance transitions*. Physical Review A **58**(6) 4961–4966 (1998), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.58.4961> (zitiert auf Seite 69)
- [150] R. Neuhaus: *Optisch detektierte NMR durch kohärente Ramanstreuung*. Dissertation, Universität Dortmund (2001), URL <http://hdl.handle.net/2003/2339> (zitiert auf Seite: 69, 70, 71)
- [151] C. Hubrich: *Erhöhung der Kohärenzzeiten in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ mittels Magnetfelder*. Masterthesis, Technische Universität Darmstadt (2011), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite: 72, 74, 82, 85)
- [152] M. Lovrić, P. Glasenapp, D. Suter, B. Tumino, A. Ferrier, P. Goldner, M. Sabooni, L. Rippe, S. Kröll: *Hyperfine characterization and spin coherence lifetime extension in $\text{Pr}^{3+}:\text{La}_2(\text{WO}_4)_3$* . Physical Review B **84**(10) 104417 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.84.104417> (zitiert auf Seite: 74, 81)
- [153] F. Bloch: *Nuclear Induction*. Physical Review **70**(7-8) 460–474 (1946), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.70.460> (zitiert auf Seite 75)
- [154] R. M. Macfarlane, A. Cassanho, R. S. Meltzer: *Inhomogeneous Broadening by Nuclear Spin Fields: A New Limit for Optical Transitions in Solids*. Physical Review Letters **69**(3) 542–545 (1992), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.69.542> (zitiert auf Seite 76)
- [155] D. R. Taylor, J. P. Hessler: *Photon echo decay in ruby: Electric dipole interactions and instantaneous diffusion*. Physics Letters A **50**(3) 205–207 (1974), URL [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9601\(74\)90791-9](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9601(74)90791-9) (zitiert auf Seite 76)
- [156] J. Huang, J. M. Zhang, A. Lezama, T. W. Mossberg: *Excess Dephasing in Photon-Echo Experiments Arising from Excitation-Induced Electronic Level Shifts*. Physical Review Letters **63**(1) 78–81 (1989), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.63.78> (zitiert auf Seite 76)
- [157] E. Fraval: *Minimising the Decoherence of Rare Earth Ion Solid State Spin Qubits*. Dissertation, Australian National University, Canberra (2006), URL <http://hdl.handle.net/1885/47058> (zitiert auf Seite: 76, 81)
- [158] A. Szabo: *Spin dependence of optical dephasing in ruby: the frozen core*. Optics Letters **8**(9) 486–487 (1983), URL <http://dx.doi.org/10.1364/OL.8.000486> (zitiert auf Seite 76)

- [159] A. Szabo, T. Muramoto, R. Kaarli: *^{27}Al nuclear-spin dephasing in the ruby frozen core and Cr^{3+} spin-flip-time measurements*. Physical Review B **42**(13) 7769–7776 (1990), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.42.7769> (zitiert auf Seite 76)
- [160] J. R. Klauder, P. W. Anderson: *Spectral Diffusion Decay in Spin Resonance Experiments*. Physical Review **125**(3) 912–932 (1962), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.125.912> (zitiert auf Seite 77)
- [161] B. Herzog, E. L. Hahn: *Transient Nuclear Induction and Double Nuclear Resonance in Solids*. Physical Review **103**(1) 148–166 (1956), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.103.148> (zitiert auf Seite 77)
- [162] W. B. Mims: *Phase Memory in Electron Spin Echoes, Lattice Relaxation Effects in CaWO_4 : Er, Ce, Mn*. Physical Review **168**(2) 370–389 (1968), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.168.370> (zitiert auf Seite: 77, 78)
- [163] J. J. Bollinger, D. J. Heizen, W. M. Itano, S. L. Gilbert, D. J. Wineland: *A 303-MHz Frequency Standard Based on Trapped Be^+ Ions*. IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement **40**(2) 126–128 (1991), URL <http://dx.doi.org/10.1109/TIM.1990.1032897> (zitiert auf Seite 79)
- [164] P. T. H. Fisk, M. J. Sellars, M. A. Lawn, C. Coles, A. G. Mann, D. G. Blair: *Very High Q Microwave Spectroscopy on Trapped $^{171}\text{Yb}^+$ Ions: Application as a Frequency Standard*. IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement **44**(2) 113–116 (1995), URL <http://dx.doi.org/10.1109/19.377786> (zitiert auf Seite 79)
- [165] C. Langer, R. Ozeri, J. D. Jost, J. Chiaverini, B. DeMarco, A. Ben-Kish, R. B. Blakestad, J. Britton, D. B. Hume, W. M. Itano, D. Leibfried, R. Reichle, T. Rosenband, T. Schaetz, P. O. Schmidt, D. J. Wineland: *Long-Lived Qubit Memory Using Atomic Ions*. Physical Review Letters **95**(6) 060502 (2005), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.060502> (zitiert auf Seite 79)
- [166] E. Fraval, M. J. Sellars, J. J. Longdell: *Dynamic Decoherence Control of a Solid-State Nuclear-Quadrupole Qubit*. Physical Review Letters **95**(3) 030506 (2005), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.030506> (zitiert auf Seite: 81, 82, 88)
- [167] L. Viola, S. Lloyd: *Dynamical suppression of decoherence in two-state quantum systems*. Physical Review A **58**(4) 2733–2744 (1998), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.58.2733> (zitiert auf Seite 87)
- [168] L. Viola, E. Knill, S. Lloyd: *Dynamical Decoupling of Open Quantum Systems*. Physical Review Letters **82**(12) 2417–2421 (1999), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.82.2417> (zitiert auf Seite 87)
- [169] G. A. Álvarez, A. Ajoy, X. Peng, D. Suter: *Performance comparison of dynamical decoupling sequences for a qubit in a rapidly fluctuating spin bath*. Physical Review A **82**(4) 042306 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.82.042306> (zitiert auf Seite 87)
- [170] C. A. Ryan, J. S. Hodges, D. G. Cory: *Robust Decoupling Techniques to Extend Quantum Coherence in Diamond*. Physical Review Letters **105**(20) 200402 (2010), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.200402> (zitiert auf Seite 87)

- [171] H. Y. Carr, E. M. Purcell: *Effects of Diffusion on Free Precession in Nuclear Magnetic Resonance Experiments*. Physical Review **94**(3) 630–638 (1954), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.94.630> (zitiert auf Seite 87)
- [172] L. Viola: *Advances in decoherence control*. Journal of Modern Optics **51**(16-18) 2357–2367 (2004), URL <http://dx.doi.org/10.1080/09500340408231795> (zitiert auf Seite 87)
- [173] W. Yang, Z.-Y. Wang, R.-B. Liu: *Preserving qubit coherence by dynamical decoupling*. Frontiers of Physics **6**(1) 2–14 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1007/s11467-010-0113-8> (zitiert auf Seite 87)
- [174] A. M. Souza, G. A. Álvarez, D. Suter: *Robust dynamical decoupling*. Philosophical Transactions of the Royal Society A **370**(1976) 4748–4769 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1098/rsta.2011.0355> (zitiert auf Seite 87)
- [175] M. F. Pascual-Winter, R.-C. Tongning, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët: *Spin coherence lifetime extension in Tm^{3+} :YAG through dynamical decoupling*. Physical Review B **86**(18) 184301 (2012), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.86.184301> (zitiert auf Seite 88)
- [176] D. L. McAuslan, P. M. Ledingham, W. R. Naylor, S. E. Beavan, M. P. Hedges, M. J. Sellars, J. J. Longdell: *Photon-echo quantum memories in inhomogeneously broadened two-level atoms*. Physical Review A **84**(2) 022309 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.84.022309> (zitiert auf Seite 89)
- [177] V. Damon, M. Bonarota, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët: *Revival of silenced echo and quantum memory for light*. New Journal of Physics **13**(9) 093031 (2011), URL <http://dx.doi.org/10.1088/1367-2630/13/9/093031> (zitiert auf Seite 89)
- [178] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, G. Gerber: *Control of Chemical Reactions by Feedback-Optimized Phase-Shaped Femtosecond Laser Pulses*. Science **282**(5390) 919–922 (1998), URL <http://dx.doi.org/10.1126/science.282.5390.919> (zitiert auf Seite: 89, 90)
- [179] C. J. Bardeen, V. V. Yakovlev, K. R. Wilson, S. D. Carpenter, P. M. Weber, W. S. Warren: *Feedback quantum control of molecular electronic population transfer*. Chemical Physics Letters **280**(1-2) 151–158 (1997), URL [http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2614\(97\)01081-6](http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2614(97)01081-6) (zitiert auf Seite: 89, 90)
- [180] T. Brixner, G. Gerber: *Quantum Control of Gas-Phase and Liquid-Phase Femtochemistry*. ChemPhysChem **4**(5) 418–438 (2003), URL <http://dx.doi.org/10.1002/cphc.200200581> (zitiert auf Seite: 89, 90)
- [181] R. S. Judson, H. Rabitz: *Teaching Lasers to Control Molecules*. Physical Review Letters **68**(10) 1500–1503 (1992), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.68.1500> (zitiert auf Seite: 89, 90)
- [182] A. M. Weiner: *Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators*. Review of Scientific Instruments **71**(5) 1929–1960 (2000), URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.1150614> (zitiert auf Seite: 89, 90)

- [183] B. J. Pearson, J. L. White, T. C. Weinacht, P. H. Bucksbaum: *Coherent control using adaptive learning algorithms*. Physical Review A **63**(6) 063412 (2001), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.63.063412> (zitiert auf Seite: 89, 90)
- [184] C. Darwin: *On the Origin of Species*. John Murray, London (1859) (zitiert auf Seite 90)
- [185] H.-G. Beyer: *The Theory of Evolution Strategies*. Springer, Berlin (2001), ISBN 3540672974 (zitiert auf Seite 90)
- [186] W. M. Spears: *Evolutionary Algorithms – The Role of Mutation and Recombination*. Springer, Berlin (2000), ISBN 3540669507 (zitiert auf Seite 90)
- [187] M. Buschbeck: *Evolutionäre Algorithmen zur Optimierung der Lichtspeicherung in einem seltenerd-dotierten Festkörper*. Masterthesis, Technische Universität Darmstadt (2009), URL <http://www.iap.tu-darmstadt.de/nlq/theses> (zitiert auf Seite: 90, 91)
- [188] I. Rechenberg: *Evolutionsstrategie – Optimierung technischer Systeme nach Prinzipien der biologischen Evolution*. Frommann Holzboog, Stuttgart (1973), ISBN 3772803733 (zitiert auf Seite 91)
- [189] J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars, N. B. Manson: *Stopped Light with Storage Times Greater than One Second Using Electromagnetically Induced Transparency in a Solid*. Physical Review Letters **95**(6) 063601 (2005), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.063601> (zitiert auf Seite 98)
- [190] U. Schnorrberger, J. D. Thompson, S. Trotzky, R. Pugatch, N. Davidson, S. Kuhr, I. Bloch: *Electromagnetically Induced Transparency and Light Storage in an Atomic Mott Insulator*. Physical Review Letters **103**(3) 033003 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.103.033003> (zitiert auf Seite 98)
- [191] R. Zhang, S. R. Garner, L. V. Hau: *Creation of Long-Term Coherent Optical Memory via Controlled Nonlinear Interactions in Bose-Einstein Condensates*. Physical Review Letters **103**(23) 233602 (2009), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.103.233602> (zitiert auf Seite 98)
- [192] Y. O. Dudin, L. Li, A. Kuzmich: *Light storage on the time scale of a minute*. Physical Review A **87**(3) 031801 (2013), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.87.031801> (zitiert auf Seite 98)
- [193] G. Heinze, C. Hubrich, T. Halfmann: *Stopped Light and Image Storage by Electromagnetically Induced Transparency up to the Regime of One Minute*. Physical Review Letters **111**(3) 033601 (2013), URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.033601> (zitiert auf Seite: 98, 100, 102)

Veröffentlichungen, Tagungsbeiträge und Medienecho

Publikationen in internationalen, begutachteten Fachzeitschriften

- G. Heinze, C. Hubrich, T. Halfmann
One minute coherence time in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ by self-optimized magnetic fields and dynamical decoupling
Physical Review A, eingereicht
- G. Heinze, C. Hubrich, T. Halfmann
Stopped Light and Image Storage by Electromagnetically Induced Transparency up to the Regime of One Minute
[Physical Review Letters **111**, 033601 \(2013\)](#)
Anmerkungen:
 - Der Artikel wurde durch einen 'Physics Viewpoint' ([Physics **6**, 80 \(2013\)](#)) besonders herausgestellt.
 - Der Artikel wurde als 'Editors Suggestion' hervorgehoben.
 - Über den Artikel wurde in der Zeitschrift Nature Photonics in der Rubrik 'News & Views' berichtet ([Nature Photonics **7**, 677 \(2013\)](#)).
 - Über den Artikel wurde in der Zeitschrift Photonics Spectra berichtet ([Photonics Spectra, Oct. 2013, 22](#)).
- G. Heinze, N. Rentzsch, T. Halfmann
Multiplexed image storage by electromagnetically induced transparency in a solid
[Physical Review A **86**, 053837 \(2012\)](#)
- G. Heinze, S. Mieth, T. Halfmann
Control of dark-state polariton collapses in a doped crystal
[Physical Review A **84**, 013827 \(2011\)](#)
- F. Beil, M. Buschbeck, G. Heinze, T. Halfmann
Light storage in a doped solid enhanced by feedback-controlled pulse shaping
[Physical Review A **81**, 053801 \(2010\)](#)
- G. Heinze, A. Rudolf, F. Beil, T. Halfmann
Storage of images in atomic coherences in a rare-earth-ion-doped solid
[Physical Review A **81**, 011401\(R\) \(2010\)](#)

Tagungsbeiträge

Vorträge auf nationalen und internationalen Tagungen

- G. Heinze, C. Hubrich, S. Mieth, T. Halfmann
Enhanced optical data and image storage by EIT in Pr:YSO
1st mini school - Marie Curie Initial Training Network - Coherent Information Processing in Rare-Earth Ion Doped Solids (CIPRIS) – Mainz, Juni 2012
- G. Heinze, C. Hubrich, S. Mieth, T. Halfmann
Enhanced optical data storage up to 1 second by EIT in a doped solid
DPG-Frühjahrstagung – Stuttgart, März 2012
- G. Heinze, S. Mieth, T. Halfmann
Control of dark state beating in Pr:YSO
Workshop on Quantum Information Processing in Rare-Earth doped Solids – Barcelona, Spanien, Mai 2011
- G. Heinze, F. Beil, T. Halfmann
Coherent Optical Addressing in a Doped Solid
3rd year meeting - EC FET project Molecular Logic Circuits (MOLOC) – Vaals, Niederlande, März 2011
- G. Heinze
Optische Bildspeicherung in atomaren Kohärenzen eines dotierten Festkörpers
Kolloquium des Instituts für Angewandte Physik, TU Darmstadt – Darmstadt, Februar 2011
- F. Beil, M. Buschbeck, G. Heinze, T. Halfmann
Evolutionary algorithms to optimize light storage in Pr³⁺:Y₂SiO₅
Workshop on rare-earth ion doped solids for quantum information – Lund, Schweden, Mai 2009
- G. Heinze, A. Rudolf, F. Beil, T. Halfmann
2D storage of light in a Pr³⁺:Y₂SiO₅ crystal
Workshop on rare-earth ion doped solids for quantum information – Lund, Schweden, Mai 2009
- F. Beil, J. Klein, G. Heinze, T. Halfmann
Optically Driven Atomic Coherences: From the Gas Phase to the Solid State
DPG-Frühjahrstagung – Hamburg, März 2009

Poster auf nationalen und internationalen Tagungen

- S. Mieth, G. Heinze, T. Halfmann
Image storage by EIT in a doped solid for up to one minute
11th European Conference on Atoms, Molecules and Photons – Aarhus, Dänemark, Juni 2013
- N. Rentzsch, G. Heinze, D. Schraft, T. Halfmann
Multiplexed image storage by EIT in a doped solid
DPG-Frühjahrstagung – Stuttgart, März 2012
- G. Heinze, A. Rudolf, F. Beil, T. Halfmann
Storage of images in atomic coherences in a doped crystal
International symposium on optical manipulation of quantum information – Paris, Frankreich, April 2010
- G. Heinze, A. Rudolf, F. Beil, T. Halfmann
Storage of images in atomic coherences in a doped crystal
Wilhelm und Else Heraeus Workshop – Bad Honnef, Februar 2010
- F. Beil, G. Heinze, F. Remacle, R. Levine, T. Halfmann
STIRAP-driven logic operations in a rare earth ion doped solid
Wilhelm und Else Heraeus Workshop – Bad Honnef, Februar 2010
- G. Heinze, F. Beil, J. Klein, T. Halfmann
Electromagnetically induced transparency and retrieval of light pulses in a $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ crystal
Frühjahrskonferenz der European Materials Research Society – Straßburg, Frankreich, Mai 2008
- G. Heinze, F. Beil, J. Klein, T. Halfmann
Electromagnetically induced transparency and retrieval of light pulses in a $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ crystal
DPG-Frühjahrstagung – Darmstadt, März 2008
- F. Beil, G. Heinze, J. Klein, T. Halfmann
Stimulated Raman adiabatic passage in a $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ crystal
DPG-Frühjahrstagung – Darmstadt, März 2008

Medienecho

Eine Reihe von Medien haben über die in der vorliegenden Arbeit erzielten Ergebnisse berichtet. Populärwissenschaftliche Artikel sind unter anderem in folgenden Zeitschriften und Online-Portalen erschienen:

- **Deutschlandfunk** vom 15.07.2013
„Haltestelle für Photonen – Darmstädter Physiker können Licht für eine Minute speichern“
- **Huffington Post** (USA) vom 25.07.2013
„Light Stopped For Minute By German Researchers In Record-Breaking Study“
- **New Scientist** (UK) vom 25.07.2013
„Light completely stopped for a record-breaking minute“
- **Daily Mail** (UK) vom 27.07.2013
„Scientists stop light completely for a record-breaking MINUTE by trapping it inside a crystal“
- **Neue Züricher Zeitung** (Schweiz) vom 31.07.2013
„Licht in der Falle – Wie man einen Rekordhalter zum Stillstand bringt“
- **Le Monde Blogs** (Frankreich) vom 31.07.2013
„Des physiciens stoppent la lumière pendant une minute“
- **Spiegel Online** vom 01.08.2013
„Quantenphysik-Rekord: Forscher konservieren Licht in Kristall“
- **Der Standard** (Österreich) vom 01.08.2013
„Physiker frieren Lichtstrahl für über eine Minute in Kristall ein“
- **Pro-Physik** vom 01.08.2013
„Kristall als Bremsklotz für Licht“
- **Die Welt** vom 04.08.2013
„Physiker frieren Licht länger als eine Minute ein“
- **Darmstädter Echo** vom 08.08.2013
„Bezwinger des Lichts“
- **Frankfurter allgemeine Zeitung** vom 10.08.2013
„Festplatte fürs Licht“
- Magazin der **Deutschen Forschungsgemeinschaft**
„Die Physik des Lichtanhaltens“
- **hoch³** – Die Zeitung der TU Darmstadt vom 01.10.2013
„Die Lichtfänger“

Betreute Master- und Bachelorarbeiten

Masterarbeiten

- Andreas Rudolf, *Speicherung von Bildern in atomaren Kohärenzen eines seltenerd-dotierten Festkörpers*, TU Darmstadt, 2009.
- Simon Mieth, *Spektroskopie und Lichtspeicherung in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ in externen Magnetfeldern*, TU Darmstadt, 2010.
- Christian Hubrich, *Erhöhung der Kohärenzzeiten in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ mittels Magnetfelder*, TU Darmstadt, 2011.
- Nina Rentzsch, *Multiplexing mittels adiabatischer Lichtspeicherung in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$* , TU Darmstadt, 2011.

Bachelorarbeiten

- Christoph Schmitt, *Aufbau eines Demonstrationsexperiments zur Charakterisierung und Anwendung von Lichtleitfasern*, TU Darmstadt, 2009.
- Moritz Hambach, *Besetzungsausgleich in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ mittels Hochfrequenzpulsen*, TU Darmstadt, 2010.
- Alexander Scharf, *Raman Heterodyn Spektroskopie an einem dotierten Festkörper*, TU Darmstadt, 2010.
- Moritz Wolf, *Entwicklung eines Kalibrier- und Justageprogramms für AOM*, TU Darmstadt, 2011.

Lebenslauf

Georg Heinze

geboren am 23.12.1982 in Trier

Schulbildung

1989 – 1993	Besuch der Grundschule in Idesheim
1993 – 1995	Besuch der Realschule St. Matthias in Bitburg
1995 – 2002	Besuch des St. Willibrord Gymnasiums in Bitburg

Wehrdienst

2002 – 2003	Wehrdienst im 5. Artillerie-Lehr-Regiment in Idar-Oberstein und Hermeskeil
-------------	--

Hochschulbildung

2003 – 2008	Studium der Physik an der Technischen Universität Kaiserslautern
2007 – 2008	Diplomarbeit mit dem Thema: „Kohärente magnetische Hochfrequenzanregungen eines seltenerd-dotierten Festkörpers“ (AG Prof. Dr. Halfmann)
2008 – heute	Promotion zum Thema „Kohärente optische Datenspeicherung mittels EIT in einem $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ -Kristall“ (AG Prof. Dr. Halfmann)

Berufliche Tätigkeit

2008 – heute	Wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Technischen Universität Darmstadt, Institut für Angewandte Physik (AG Prof. Dr. Halfmann)
--------------	---

Darmstadt, 16. Juli 2013

Danksagung

Thomas, mittlerweile sind einige Jahre vergangen, seitdem ich das erste Mal in Deinem – damals noch etwas kleineren – Büro in Kaiserslautern vorbeigeschaut habe, um mich darüber zu informieren, was es eigentlich mit diesem „Prüso“ auf sich hat. Seitdem ist einiges geschehen. Den Umzug der AG nach Darmstadt habe ich immer als Chance gesehen, und kann nun mit Fug und Recht behaupten, dass es eine gute Entscheidung war, Dir zu „folgen“. Ich möchte Dir für Deine Unterstützung, Dein Vertrauen, aber vor allem auch für die Möglichkeit danken, in einem tollen Team arbeiten zu dürfen. Ich wünsche Dir, dass es auch weiterhin so erfolgreich vorwärts geht und Du eine so bunte Truppe um Dich scharen kannst.

Lieber **Professor Walther**, vielen Dank für die Übernahme des Zweitgutachtens. Auch, als es am Ende meiner Arbeit nochmal turbulent wurde, und Termine hin und her verschoben wurden, haben Sie sich davon nicht beeindrucken lassen, und sind bei Ihrer Zusage geblieben. Das freut mich sehr!

Ein ganz besonderer Dank gebührt dem Pr:YSO-Team. Den Leuten mit denen ich nicht nur endlose Stunden in Labor und Büro, sondern mitunter auch viel Freizeit verbracht habe.

Fabi, ich kann mich noch an Zeiten erinnern, als wir das ganze Experiment für uns alleine hatten—unglaublich! In meiner Diplomarbeit hast Du mich unter Deine Fittiche genommen, aber auch später warst Du für mich immer der erste Ansprechpartner. Du wirst es nicht glauben, aber schon kurz nachdem Du die AG verlassen hattest, um Dich neuen Herausforderungen (Scharen von Kindern!) zu widmen, habe ich Deinen urpfälzischen Humor vermisst. Danke für die gute Zeit!

Simon, als ich damals erfuhr, dass Du Dich für unser Projekt entschieden hattest, wusste ich sofort dass wir uns gut verstehen würden. Durch Deine offene und freudige Art, hast Du immer Leben in die Bude gebracht und nicht nur meinen Alltag bereichert. Dein oftmals unkonventioneller Blick auf die Dinge hat auch meine Sichtweise – öfter als ich vielleicht zugeben mag – geändert. Danke für so viele wahnwitzige Momente, aber vor allem für Deine Freundschaft!

Daniel, wir haben im Laufe der Zeit nicht nur das ein oder andere physikalische Problem, sondern auch so manche topologische Herausforderung gemeistert. Ich empfinde es als einen riesen Glücksfall, wenn man mit Leuten zusammen arbeitet, mit denen man auch mehr als nur die beruflichen Interessen teilt. Danke für viele schöne Erinnerungen, auch abseits der Physik!

Andi, als ich damals das erste Mal in Darmstadt ins Labor kam, und Du mir voller Stolz den frisch aufgesetzten Aufbau gezeigt hast, waren meine ersten Worte: „Das muss alles abgerissen werden.“ ... Das tut mir leid! Im Nachhinein muss ich sagen, dass wir beide uns in Arbeits- und Denkweise wohl am ähnlichsten waren. Ich bin froh, dass wir die Bildspeicherung gemeinsam ins Rollen gebracht haben, und dass Du anschließend auch auf anderem Felde so erfolgreich warst.

Christian, ohne Deinen unermüdlichen Einsatz wären wir nicht so weit gekommen. Dabei denke ich nicht nur an die vielen Nächte im Labor und die dabei erzielten, tollen Ergebnisse, sondern auch an Deine völlige Verausgabung beim TUD-Marathon. Die Belohnung mit dem PRL kommt vielleicht spät, aber sie kommt von Herzen. Danke!

Nina, danke für Deine tatkräftige Unterstützung bei den Multiplexing-Experimenten. Durch Deine quirlige und ausgelassene Art hast Du viel zur guten Stimmung im Team beigetragen. Ich wünsche Dir, dass Du an Deinen neuen Aufgaben viel Freude hast, und hoffe, dass es den Kaninchen gut geht. :-)

Martin, auch wir haben neben der Physik einiges unternommen und uns dabei gegenseitig zu Höchstleistungen gepusht – Mein Gott, war ich kaputt. Nach Abschluss Deiner MSc-Arbeit bist Du damals in die „taffe“ Industrie gewechselt und hast das Wettrennen um die schnellste Promotion klar gewonnen. Chapeau!

Kein Abschluss ohne Nachfolger! Lieber **Moritz**, lieber **Nikolaus**, ich freue mich, dass Ihr die YSO-Fahne weiter hochhalten werdet. Mit Euch beiden ist das Projekt sowohl wissenschaftlich als auch stimmungstechnisch gut gerüstet. :-)

Auch möchte ich mich bei „meinen“ Bachelor-Studenten **Christoph Schmitt**, **Moritz Hambach**, **Moritz Wolf** und **Alexander Scharf** für teils nervenaufreibende, aber doch überwiegend lustige Stunden bedanken. Alex, Du bist ein Original!

Die Pr:YSO-Riege schließen die ab, mit denen ich leider nicht mehr so viel Zeit im Labor verbracht habe, die aber ebenso Wichtiges geleistet haben und mit denen ich mich immer prima verstanden habe: **Nils Vogelmann**, **Samuel Kometa**, **Torsten Abel**, **Daniel Englisch**, **Oliver Diemel**, **Christian Hoyer**, **Gregor Hofmann** und **Sören Kaufmann**. Jungs, danke für Euer Engagement und die gute Zeit!

Neben den oben Genannten gibt es natürlich noch eine große Zahl anderer AG-Mitglieder, denen ich auch zu großem Dank verpflichtet bin. Dabei möchte ich mich insbesondere bei meinen langjährigen Co-Doktoranden **Holger Münch**, **Uwe Petzold** und **Frank Blatt** bedanken. Ihr habt mir immer mit Rat und Tat zur Seite gestanden. Uwe, ein super Fußballteam haben wir da aufgezogen. Die ausgelassenen Stunden auf dem Platz werde ich vermissen. Frank, Dein Excelperfektioniertes Lauf-coaching hat uns alle ganz weit nach vorne gebracht. :-)

Außerdem danke ich **Thorsten Peters**. Thorsten, obwohl Du von uns allen wahrscheinlich mit Abstand die meisten Meter zwischen Büro und Labor machst, hast

Du Dir doch immer die Zeit genommen, über meine teils obskuren Fragen nachzudenken. Ich wünsche Dir und „Deinem“ Projekt in Zukunft viel Erfolg – aber da mache ich mir ehrlich gesagt keine Sorgen.

Natürlich geht mein Dank auch an alle aktuellen und ehemaligen Mitglieder der AG von denen ich hier stellvertretend die aktuellen Doktoranden **Patric Ackermann**, **Andreas Büchel** und **Christian Stock** nennen will. Bitte gebt meinen Dank auch an Eure „Sprösslinge“ weiter.

I would also like to thank our foreign guests who have significantly contributed to my work. A special thanks goes to **Leonid Yatsenko** and **Alexander Romanenko**. As you can see, our calculations and simulations have now become very important for the project. I'm very grateful for all your efforts and hope you had a good time in Germany. **Bruce W. Shore**, **Nikolay Vitanov**, and **Genko Genov** it was a pleasure to share an office with you. I surely benefited a lot from so much theory power. However, I also enjoyed our several discussions beyond physics—may it about different cultures or German beer which sometimes seemed to have more appeal than a Hamiltonian. ;-)

Schließlich möchte ich mich bei den guten Seelen der AG bedanken. Liebe **Damaris**, Du hältst nicht nur das „Chaos“ unter Kontrolle, sondern lenkst unsere Blicke auch mal auf Dinge, die sonst an uns „Workaholics“ vorüberziehen würden. Mit **Nafiseh** und **Bala** hast Du jetzt internationale Unterstützung bekommen. Danke Euch dreien für Euer Engagement!

Ein großes Dankeschön geht auch an die vielen hilfreichen Hände im Institut für Angewandte Physik. Hier ist insbesondere die Feinmechanische Werkstatt unter der Leitung von Herrn **Kalbfleisch** bzw. Herrn **Weik** zu nennen, die meine teils kniffligen Wünsche stets hervorragend umgesetzt haben. Außerdem möchte ich mich bei Herrn **Schmutzler** für den EDV-Support sowie bei Herrn **Baumann**, Herrn **Rök** und Herrn **Kringel** für die Hilfe rund um alle Elektronikfragen bedanken. Lieber Herr Baumann, die Spulenwickelmaschine ist ihr Gewicht – und das ist einiges – in Gold wert! :-)

Zu guter Letzt geht mein größter Dank an meine Familie. An meine Eltern, die, obwohl Sie Ihren Sohn auch schon mal mehrere Monate nicht zu Gesicht bekommen haben, mich immer unterstützt und stets großes Interesse an meinem „Fortkommen“ gezeigt haben. Und an meinen Bruder, der, wenn auch mal wieder mehrere tausend Kilometer entfernt, mich immer noch wie kein Zweiter versteht. Obwohl auch wir uns mittlerweile eher selten sehen, habe ich nie das Gefühl gehabt, dass sich irgendetwas verändert hat – abgesehen natürlich von so manch neuer Verpflichtung. :-) Ich kann hier eigentlich nichts schreiben, worüber wir nicht sowieso schon gesprochen hätten. Es bleibt mir daher nur noch eines: **Danke für Alles!**

Darmstadt, im Juli 2013

Georg Heinze

Erklärung zur Dissertation

Hiermit versichere ich, die vorliegende Dissertation ohne Hilfe Dritter nur mit den angegebenen Quellen und Hilfsmitteln angefertigt zu haben. Alle Stellen, die aus Quellen entnommen wurden, sind als solche kenntlich gemacht. Diese Arbeit hat in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen.

Darmstadt, den 16. Juli 2013

(Georg Heinze)